

DIALOG(R)File 352: Derwent WPI

(c) 2008 Thomson Reuters. All rights reserved.

0009711999 & & *Drawing available*

WPI Acc no: 1999-573849/199949

XRAM Acc no: C1999-167562

XRPX Acc No: N1999-423134

**Organic electroluminescent device, suitable as light source for displays and printer heads, having high luminance at low driving voltage**

Patent Assignee: IDEMITSU KOSAN CO LTD (IDEK)

Inventor: FUKUOKA K; HOSOKAWA C; NAKAMURA H; SHOJI H; TOKAILIN H;  
CHISHIO H; HIROAKI N; HIROSHI T

Patent Family ( 10 patents, 30 & countries )

Patent Number	Kind	Date	Application Number	Kind	Date	Update	Type
EP 949696	A2	19991013	EP 1999106151	A	19990407	199949	B
JP 11354283	A	19991224	JP 1998257275	A	19980910	200011	E
CN 1236825	A	19991201	CN 1999104852	A	19990408	200015	E
KR 1999082912	A	19991125	KR 199911712	A	19990403	200055	E
TW 417312	A	20010101	TW 1999103676	A	19990310	200134	E
JP 2002231455	A	20020816	JP 1998257275	A	19980910	200269	E
			JP 2001370225	A	19980910		
US 6509109	B1	20030121	US 1999281953	A	19990331	200309	E
CN 1222634	C	20051012	CN 1999104852	A	19990408	200653	E
CN 1770939	A	20060510	CN 200510092697	A	19990408	200657	E
JP 4105429	B2	20080625	JP 1998257275	A	19980910	200844	E
			JP 2001370225	A	20011204		

Priority Applications (no., kind, date): JP 199896220 A 19980408; JP 1998114123 A 19980409; JP 1998257275 A 19980910

Patent Details

Patent Number	Kind	Lan	Pgs	Draw	Filing Notes	
EP 949696	A2	EN	38	10		
Regional Designated States,Original	AL AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LT LU LV MC MK NL PT RO SE SI					
JP 11354283	A	JA	22			
KR 1999082912	A	KO		10		
TW 417312	A	ZH				
JP 2002231455	A	JA	22		Division of application	JP 1998257275
JP 4105429	B2	JA	34		Division of application	JP 1998257275
					Previously issued patent	JP 2002231455

#### Alerting Abstract EP A2

**NOVELTY** – The driving voltage of an organic electroluminescence device (ELD) is reduced and the luminance increased by using a nitrogen-free aromatic compound in the electron-injection region or combining an N-containing aromatic compound with a specific reducing dopant in that region.

**DESCRIPTION** – An organic electroluminescence device (ELD) (1) comprises (in order of lamination):

- (a) an anode layer;
- (b) a light emission region;
- (c) an electron injection region containing a nitrogen-free aromatic compound (I) and a reducing dopant (II), the electron affinity of the region being 1.8–3.6 eV;
- (d) a cathode layer.

An **INDEPENDENT CLAIM** (2) is also included for an organic ELD comprising (in order of lamination): (a) an anode layer;

- (b) a light emission region;
- (c) an electron injection region containing an electron-transporting compound (III) and a reducing dopant (IV) having a work function of  $\phi > 2.9$  eV, the electron affinity of the region being 1.8–3.6 eV;
- (d) a cathode layer.

**USE** – As light sources for displays, printer heads and other domestic and industrial applications.

ADVANTAGE – The devices exhibit luminances of up to 1300 cd/m<sup>2</sup> at low driving voltages and have lifetimes of up to 3000 hours.

DESCRIPTION OF DRAWINGS – The drawing shows a vacuum evaporation apparatus for fabricating the electroluminescent device.

211 substrate holder

212 vapor source containers

Title Terms /Index Terms/Additional Words: ORGANIC; ELECTROLUMINESCENT; DEVICE; SUIT; LIGHT; SOURCE; DISPLAY; PRINT; HEAD; HIGH; LUMINOUS; LOW; DRIVE; VOLTAGE

#### Class Codes

International Patent Classification					
IPC	Class Level	Scope	Position	Status	Version Date
H01L-033/00; H05B-033/14			Main		"Version 7"
H05B-033/00			Secondary		"Version 7"
C09K-0011/06	A	I	L	R	20060101
C09K-0011/06	A	I	L	B	20060101
H01L-0051/00	A	I		R	20060101
H01L-0051/30	A	I		R	20060101
H01L-0051/50	A	I	F	R	20060101
H01L-0051/50	A	I		R	20060101
H01L-0051/50	A	I	F	B	20060101
H01L-0051/52	A	I		R	20060101
H05B-0033/14	A	I		R	20060101
H05B-0033/20	A	I	F	B	20060101
H05B-0033/22	A	I		R	20060101
C09K-0011/06	C	I	L	R	20060101
C09K-0011/06	C	I	L	B	20060101
H01L-0051/00	C	I		R	20060101

H01L-0051/05	C	I		R	20060101			
H01L-0051/50	C	I	F	R	20060101			
H01L-0051/50	C	I		R	20060101			
H01L-0051/50	C	I	F	B	20060101			
H05B-0033/12	C	I	F	B	20060101			
H05B-0033/14	C	I		R	20060101			
H05B-0033/22	C	I		R	20060101			

공개특허특1999-0082912

(19)대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)(51) Int. Cl. <sup>6</sup>  
H05B 33/14(11) 공개번호 특1999-0082912  
(43) 공개일자 1999년11월25일(21) 출원번호 10-1999-0011712  
(22) 출원일자 1999년04월03일(30) 우선권주장 98-962201998년04월08일일본(JP)  
(71) 출원인 이데미쓰 고산 가부시키가이샤 도미나가 가즈토  
일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 3초메 1반 1고  
(72) 발명자 나카무라히로아키  
일본 지바켄299-0293 소데가우라시 가미이즈미1280  
호소카와지시오  
일본 지바켄299-0293 소데가우라시 가미이즈미1280  
후쿠오카게니치  
일본 지바켄 299-0293소데가우라시 가미이즈미1280  
토카이린히로시  
일본 지바켄299-0293소데가우라시 가미이즈미1280  
(74) 대리인 김창세

심사청구 : 없음

## (54) 유기 전자 발광 소자

## 요약

본 발명은 유기 전자 발광 소자에 관한 것으로, 구체적으로는 음극층 16, 전자주입부 14, 발광부 12 및 양극층 10을 차례로 적층시킨 구조를 갖는 유기 EL 소자에 있어서, 전자주입부 14에 탄소 및 수소로 이루어진 방향족 고리 화합물, 또는 탄소, 수소 및 산소로 이루어진 방향족 고리 화합물, 및 환원성 도판트를 포함하고, 전자주입부의 전자전하력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 하거나, 또는 전자주입부 14에 전자수송성 화합물 및 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트를 포함하여 전자주입부의 전자전하력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함으로써 유기 EL 소자의 발광 휘도를 향상시키고 수명을 연장시키고자 한다.

## 대표도

도1

## 명세서

## 도면의 간단한 설명

도 1은 제 1 및 제 2 실시 형태의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도 2는 제 3 실시 형태의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도 3은 제 4 실시 형태의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도 4는 제 5 실시 형태의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도 5는 실시예 1의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도 6은 실시예 2의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도 7은 제 6 실시 형태의 진공증착 장치의 사시도이다.

도 8은 제 6 실시 형태의 진공증착 장치의 단면도이다.

도 9는 기판의 측정점을 설명하기 위해 제공되는 도이다.

도 10은 종래의 유기 EL 소자의 단면도이다.

도면의 주요부분에 대한 부호의 설명 10 음극층 12 발광부 14 전자주입부 16 양극층 18 정공주입수송층 18a 정공주입층 18b 정공수송층 20 제 1 계면층 22 유기기판 24 제 2 계면층 30 기판 50 음극 52 제 1 유기막 54 제 2 유기막 56 제 3 유기막, 발광부 58 양극 60 유기 EL 소자 100, 102, 102a, 104, 104a, 106 유기 EL 소자 201 진공증착 장치 203 기판 210 진공조 211 기판홀더 212 증착원 213 회전축부 213A 회전축선 214 모터 221 가상원

## 발명의 상세한 설명

### 발명의 목적

#### 발명이 속하는 기술 및 그 분야 종래기술

본 발명은 유기 전자 발광 소자(이하, 유기 EL 소자라고 한다)에 관한 것이다. 더욱 상세하게는, 가정용 및 공업용의 표시기기(디스플레이) 또는 프린터헤드의 광원 등으로 사용하기에 적합한 유기 EL 소자에 관한 것이다.

종래의 유기 EL 소자의 예는 문헌 1(일본 특허 공개 제 92-297076 호 공보)에 개시되어 있다. 문헌 1에 개시된 유기 EL 소자 60은 도 7에 나타난 바와 같이 음극층 58과 투명전극인 양극층 50의 사이에 세 층의 유기막 52, 54 및 56을 끼운 유기막 적층을 구성하고 있다. 그리고, 세 층의 유기막중 음극층 58과 접한 제 1 유기막 52에는 공여체성 불순물이 도핑되어 있고, 한편 양극층 50과 접한 제 2 유기막 54에는 수용체 불순물이 도핑되어 있다. 이러한 수용체 불순물로는 CN 치환 화합물 및 퀴논 화합물(예를 들면 클로라닐)이 사용되고 있다. 그리고, 제 1 유기막 52와 제 2 유기막에 끼여 있는 제 3 유기막을 발광층 56으로 한다. 발광층 56에는 제 1 및 제 2 유기막인 52 및 54에 의해 담체가 둘러싸이게 된다. 그 때문에 이 유기 EL 소자 60은 낮은 구동 전압으로 높은 발광 휘도(발광 효율)를 획득할 수 있다.

또한, 종래의 유기 EL 소자의 다른 예는 문헌 2("Digest of Technical Papers", SID'97, p.775, 1997)에 개시되어 있다. 문헌 2에 개시된 유기 EL 소자는 전자수송층을 8-히드록시퀴놀린 Alq<sub>3</sub>체(Alq<sub>3</sub> 착체)에 나을 첨가한 재료로 구성되어 있다.

#### 발명이 이루고자하는 기술적 과제

그러나, 문헌 1에 개시된 유기 EL 소자에 있어서, 수용체 불순물로 사용된 CN 치환 화합물 및 퀴논 화합물은 전자수송성에서 뛰어난 것으로, 수용체성이 강하고 그의 전자친화력은 3.7eV 이상의 높은 값이다. 그러므로, 이들 수용체 불순물은 발광부를 구성하는 화합물과 반응하여 전하 이동 착체 또는 여기착체(엑시플렉스)를 형성하기 쉬운 경향이 있다. 그 때문에 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되거나 수명이 짧다고 하는 문제가 있었다.

또한, 문헌 1에 개시된 유기 EL 소자에 있어서, 공여체성 불순물에 도핑된 제 1 유기층의 전자 친화력과 발광부의 전자 친화력의 차이는 0.5eV 이상으로 큰 값이다. 이때문에, 발광부와 제 1 유기층의 접합이 블로킹 접합으로 되고 제 1 유기층으로부터 발광부로 전자 주입이 불량해지기 쉬워, 결과적으로 유기 EL 소자의 발광효율이 더욱 저하된다고 하는 문제가 있었다.

한편, 문헌 2에 개시된 유기 EL 소자에 있어서도, Alq<sub>3</sub> 착체는 질소 원자를 포함하고 있어서, 상기 Alq<sub>3</sub> 착체 및 Li 화합물로 이루어진 전자수송층은 전자수송성에서 우수한 것으로, 전하이동 착체 또는 엑시플렉스를 형성하기 쉽고, 또한 구동전압이 낮다고 하는 경향이 있다. 그러므로, 문헌 1에 개시된 유기 EL 소자와 동일하게 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되기 쉽고, 수명이 짧다고 하는 문제가 있다.

그래서, 본 발명의 발명자들은 상기 문제를 예의 검토하여, 전자주입부에 있어서 질소원자를 포함하지 않은 방향족 화합물을 사용하거나 또는 질소원자를 포함한 방향족 고리 화합물을 사용한 경우에 있어서도, 특정 환원성 도판트를 조합하여 사용함으로써 유기 EL 소자의 구동전압을 감소시키고, 발광 휘도를 향상시키고 동시에 수명 연장이 도모됨을 발견하였다. 즉, 본 발명은 구동전압이 낮고 발광 휘도가 높을 뿐만 아니라 수명이 긴 유기 EL 소자를 제공하는 것을 목적으로 한다.

### 발명의 구성 및 작용

본 발명의 유기 EL 소자의 양태(제 1 발명)에 의하면, 적어도 양극층, 발광부, 전자주입부 및 음극층을 차례로 적층한 구조를 하고, 전자주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물 및 환원성 도판트를 함유하고 있고, 또한 전자 주입부의 전자 친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함을 특징으로 한다.

이와같이 전자 주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물을 사용함으로써 우수한 전자 주입성이 얻어짐과 동시에 인접한 발광부의 구성 재료와 반응하는 것을 억제할 수 있다. 즉, 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물은 탄소 및 수소로 이루어진 방향족 고리 화합물 또는 탄소, 수소 및 산소로 이루어진 방향족 고리 화합물로 구성되어 있고, 질소 함유 방향족 고리 및 전기 흡인기(예를 들면 -CN기, -NO

<sub>2</sub>기, 아미드기, 이미드기)라고 하는 질소 함유기를 포함하지 않는다. 따라서, 전자주입부와 발광부의 계면에서 발광 효율이 낮은 전하 이동 착체 또는 엑시플렉스가 발생하는 것을 효율적으로 억제할 수 있다.

또한, 전자주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물과 함께, 환원성 도판트를 함유함으로써 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물이 갖는 방향족 고리를 효율적으로 환원시켜서 음이온 상태로 할 수 있다. 따라서, 발광 효율이 낮은 전하 이동 착체 또는 엑시플렉스의 발생을 보다 유효하게 방지하여 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상 및 수명 연장을 도모할 수 있다.

또한, 이와같이 전자주입부의 전자친화력을 제한함으로써 뛰어난 전자주입성이 얻어짐과 동시에, 전자주입부와 발광부의 계면에 있어서 전하이동착체 또는 엑시플렉스가 발생하는 것을 억제하고, 또한 전자주입부와 발광부의 불로킹 집합의 발생도 억제할 수 있다. 따라서, 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상 및 수명 연장을 더욱 도모할 수 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는 데에 있어서, 전자 주입부의 유리전이점을 100℃ 이상의 값으로 하는 것이 바람직하다.

이와같이 전자 주입부의 유리전이점을 100℃ 이상으로 함으로써, 유기 EL 소자의 내열온도를 예를 들면 85℃ 이상으로 할 수 있다. 따라서, 발광시에 전류주입층에서 발광부로의 전류주입에 의한 줄(Joule) 열에 의해 전자주입부가 단시간에 파손되는 경향이 줄어들게 되고, 유기 EL 소자의 수명 연장을 더욱 도모할 수 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 방향족 고리 화합물이 안트라센, 플루오렌, 페릴렌, 피렌, 페난트렌, 크리스렌, 테트라센, 루브렌, 터페닐렌, 퀴터페닐렌, 세크시페닐렌 및 트리페닐렌으로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 방향족 고리로 형성된 기를 함유하는 것이 바람직하다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 방향족 고리 화합물이 스티릴 치환된 방향족 고리, 디스티릴 치환된 방향족 고리 및 트리스티릴 치환된 방향족 고리로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 방향족 고리로 형성된 기를 함유하는 것이 바람직하다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 환원성 도판트가 알칼리금속, 알칼리토금속, 희토류금속, 알칼리금속의 산화물, 알칼리금속의 할로겐화물, 알칼리토금속의 산화물, 알칼리토금속의 할로겐화물, 희토류금속의 산화물 또는 희토류금속의 할로겐화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 물질인 것이 바람직하다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 환원성 도판트의 일함수를 3.0eV 이하의 값으로 하는 것이 바람직하다.

이와 같이 일함수 값이 특정 값 이하인 환원성 도판트를 사용함으로써, 환원능력을 충분히 발휘하여 구동전압의 감소, 발광휘도의 향상 및 수명 연장을 도모할 수 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 환원성 도판트가 Li, Na, K, Rb 및 Cs으로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리금속인 것이 바람직하다.

이들 환원성 도판트는 특히 환원능력이 높고 비교적 소량 첨가에 의해 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상, 예를 들면 500cd/m<sup>2</sup> 이상(7V 인가조건)의 높은 값이 수득되고, 또한 수명 연장, 예를 들면 1000시간 이상의 반감 수명을 수득할 수 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 전자 주입부의 에너지 차이를 2.7eV 이상의 값으로 하는 것이 바람직하다.

이와 같이, 전자 주입부의 에너지 차이를 크게 해두면 전자주입부에 홀이 이동하는 것을 유효하게 방지할 수 있다. 따라서, 전자 주입부 자체가 발광하는 것을 피할 수 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 방향족 고리 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율을 1:20 내지 20:1(몰비) 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다.

방향족 고리 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율이 이와 같은 범위 밖에 있다면 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되거나 수명이 단축되는 경향이 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 발광부와 전자주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 동일한 종류의 방향족 고리 화합물을 함유하는 것이 바람직하다.

양쪽 부위에 이와 같이 동일한 종류의 방향족 고리 화합물을 함유함으로써 뛰어난 밀착성이 얻어지고 전자주입부에서 발광부로 부드럽게 전자가 이동함과 동시에 기계적 강도를 향상시킬 수 있다.

또한, 제 1 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 또는 후술하는 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 음극층과 전자주입부 사이 및 양극층과 발광부 사이 또는 어느 한쪽에 계면층을 설치하는 것이 바람직하다.

이와 같이 계면층을 설치함으로써, 발광 휘도 및 반감 수명 값을 현저하게 향상시킬 수 있다.

또한, 본 발명의 다른 유기 EL 소자의 양태(제 2 발명)에 의하면, 적어도 양극층, 발광부, 전자주입부 및 음극층을 차례로 적층시킨 구조를 갖고, 전자주입부에 전자수송성 화합물 및 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트를 포함하고, 또한 전자주입부의 전자친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함을 특징으로 한다.

이와 같이 전자주입부에 일함수로서 특정값을 갖는 환원성 도판트를 함유함으로써, 전자수송성 화합물이 산화된 경우에도 효율적으로 환원시켜 음이온 상태로 할 수 있다. 따라서, 전하 이동 착체 또는 엑시플렉스의 발생을 유효하게 방지하고, 유기 EL 소자에 있어서 구동전압의 감소, 발광 휘도의 향상 및 수명 연장을 도모할 수 있다. 즉, 제 2 발명에 있어서는 환원성 도판트의 환원능력이 높기 때문에 제 1 발명과 달리 전자수송성 화합물에 질소 함유 방향족 고리 및 전기흡인기라고 하는 질소 함유기(질소원자)를 포함하더라도 발광부의 구성재료와 반응하는 것을 억제할 수 있다고 하는 이점이 있다.

또한, 이와 같이 전자 주입부의 전자 친화력을 제한함으로써, 전자주입부와 발광부의 계면에 있어서 전하 이동 착체 또는 엑시플렉스가 발생하는 것을 억제함과 동시에, 전자주입부와 발광부의 블로킹 접합의 발생도 억제할 수 있다. 따라서, 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상 및 수명 연장을 더욱 도모할 수 있다.

또한, 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 환원성 도판트가 Na, K, Rb, Cs, Ca, Sr 및 Ba로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리금속 또는 알칼리토금속인 것이 바람직하다.

이들 환원성 도판트는 Li보다도 환원능력이 크고, 비교적 소량의 첨가에 의해 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상, 예를 들면 500cd/m<sup>2</sup> 이상(7V 인가조건)의 높은 값이 수득되며, 또한 수명 연장, 예를 들면 1000시간 이상의 반감수명을 수득할 수 있다.

또한, 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 전자수송성 화합물이 질소 함유 복소환 화합물을 포함하는 것이 바람직하다.

질소 함유 복소환 화합물은 전자수송성이 뛰어나 전자주입성이 더욱 향상되기 때문이다.

또한, 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 질소 함유 복소환 화합물이 질소 함유 착체, 퀴놀린 유도체, 퀴놀린 유도체, 옥사디아졸 유도체, 티아디아졸 유도체 및 트리아졸 유도체로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 화합물인 것이 바람직하다.

또한, 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율을 1:20 내지 20:1(몰비) 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다.

전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율이 이러한 범위 밖으로 되면 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되거나 수명이 단축되는 경향이 있다.

또한, 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 전자주입부의 유리전이점을 100℃ 이상의 값으로 하는 것이 바람직하다.

이와 같이 전자주입부의 유리전이점을 제한함으로써, 유기 EL 소자의 내열온도를 높이고, 유기 EL 소자의 수명 연장을 도모할 수 있다.

또한, 제 2 발명의 유기 EL 소자를 구성하는데 있어서, 발광부와 전자주입부에 동일한 종류의 전자수송성 화합물을 사용하는 것이 바람직하다.

발광부와 전자주입부 양쪽에 이와같이 동일한 종류의 전자수송성 화합물을 함유함으로써, 뛰어난 밀착성이 수득되고 전자주입 영역에서 발광부로 부드럽게 전자가 이동할 수 있음과 동시에 기계적 강도를 향상시킬 수 있다.

이하에서 도면을 참조하여 본 발명의 실시 형태에 대하여 설명한다. 또한 참조한 도면은 본 발명이 이해될 수 있는 정도로 각 구성 성분의 크기, 형상 및 배치 관계를 개략적으로 예시하는데 지나지 않는다. 따라서, 본 발명은 도시한 예에만 한정되는 것은 아니다. 또한, 도면에는 단면을 표시한 해칭(hatching)을 생략한 경우가 있다.

**제 1 실시 형태** 우선, 도 1을 참조하여 본 발명의 유기 EL 소자의 제 1 실시 형태에 대해 설명한다. 도 1은 유기 EL 소자 100의 단면도



이고, 양극층 10, 발광부 12, 전자주입부 14 및 음극층 16을 기판상(도시되지 않음)에 차례로 적층한 구조를 하고 있음을 나타내고 있다.

이하에서 제 1 실시 형태의 특징적인 부분인 전자주입부 14에 대해 중심으로 설명한다. 따라서, 그 이외의 구성성분, 예를 들면 양극층 10, 발광부 12 및 음극층 16 등의 구성 및 제법에 대해서는 간단하게 설명하고, 언급하지 않은 부분에 대해서는 유기 EL 소자 분야에서 일반적으로 공지된 구성 및 제법을 채택할 수 있다.

(1) 전자주입부방향족 고리 화합물 제 1 실시 형태의 전자주입부는 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물, 즉, 탄소(C) 및 수소(H)로 이루어진 방향족 고리 화합물, 또는 탄소(C), 수소(H) 및 산소(O)로 이루어진 방향족 고리 화합물을 함유하고 있다. 또한 탄소 및 수소로 이루어진 방향족 고리 화합물 및 탄소, 수소 및 산소로 이루어진 방향족 고리 화합물은 각각 단독으로 사용해도 되고, 또는 조합하여 사용해도 된다.

여기에서 질소 원자를 포함하지 않은 바람직한 방향족 고리 화합물로는, 예를 들면 안트라센, 플루오렌, 페릴렌, 피렌, 페난트렌, 크리센, 테트라센, 루브렌, 티페닐렌, 퀴터페닐렌, 세크시페닐렌, 트리페닐렌, 피센, 코로넬, 디페닐안트라센, 벤즈[a]안트라센 및 비나프탈렌으로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 방향족 고리로 형성된 기를 함유하는 것을 들 수 있다.

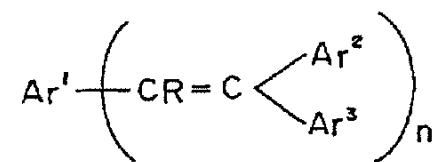
또한, 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물은 이들 방향족 고리중 3개 이상의 고리가 축합된 방향족 고리, 예를 들면 안트라센 등을 함유하는 것이 보다 바람직하다. 이와 같이 3개 이상의 고리가 축합된 방향족 고리를 가짐으로써, 전자 이동성이 높아지고 유기 EL 소자의 발광 휘도를 향상시키거나 고속응답성을 높일 수 있다.

또한, 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물은 스티릴 치환된 방향족 고리, 디스티릴 치환된 방향족 고리 또는 트리스티릴 치환된 방향족 고리로 형성된 기를 함유하면 더욱 좋다.

이와 같이 스티릴 치환된 방향족 고리를 가짐으로써 유기 EL 소자의 발광 휘도 및 수명을 보다 향상시킬 수 있다.

여기에서, 스티릴 치환된 기를 함유하는 방향족 고리 화합물로는, 예를 들면, 하기 화학식 1에 나타난 구조식으로 표시되는 화합물을 사용하는 것이 바람직하다:

[화학식 1]



상기 식에서, n은 축합수를 표시하고, n은 1 내지 4이다.

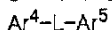
또한 R은 수소 원자 또는 탄소수가 6 내지 40인 방향족 기(방향족 고리)이다. 또한 Ar

<sup>1</sup>은 탄소수가 6 내지 40인 방향족기이고, Ar<sup>2</sup> 및 Ar<sup>3</sup>은 각각 수소 원자 또는 탄소수가 6 내지 40인 방향족 기이다. 그리고 Ar

<sup>1</sup>, Ar<sup>2</sup> 및 Ar<sup>3</sup>중 하나 이상은 방향족 기이다. 또한 이러한 방향족 기는 3개 이상의 고리가 축합 또는 연결되어 있는 것이 바람직하다.

또한 디스티릴 치환된 기를 함유하는 방향족 고리 화합물은, 예를 들면 하기 화학식 2에 나타난 구조식으로 표시되는 화합물을 사용하는 것이 바람직하다:

[화학식 2]



상기 식에서, L은 탄소수 6 내지 30의 아릴렌기이다.

이러한 아릴렌 기로는, 예를 들면 페닐렌, 비페닐렌, 나프틸렌, 안트라센디일이 바람직하고, 또한 아릴렌기의 구조로는 단결정인 것이 바람직하다.

또한 Ar<sup>4</sup> 및 Ar<sup>5</sup>로는 예를 들면, 디페닐안트라센, 디페닐피렌이 바람직하다.

또한 상기 화학식 1 또는 2에 나타난 화합물을 치환기로 더욱 치환하는 것이 바람직하다. 이와 같은 치환기로는, 예를 들면 탄소수가 1 내지 30개인 알킬기, 탄소수가 1 내지 30개인 알킬옥시기, 탄소수가 6 내지 30개인 아릴알킬기, 디아릴아미노기, N-알킬카바졸릴기 또는 N-페닐카바졸릴기가 바람직하다. 이들 치환기로 치환함으로써 발광효율이 낮은 착체의 발생을 효율적으로 억제할 수 있다.

환원성 도판트 제 1 실시 형태에 따른 전자주입부는 환원성 도판트를 함유하고 있음을 특징으로 한다. 여기에서, 환원성 도판트는 방

항족 고리 화합물이 산화된 경우에 그것을 환원시킬 수 있는 물질로 정의된다. 따라서, 환원성 도판트는 일정한 환원성을 갖는 것이면 특별히 한정되지는 않지만, 구체적으로 알칼리금속, 알칼리토금속, 희토류금속, 알칼리금속의 산화물, 알칼리금속의 할로겐화물, 알칼리토금속의 산화물, 알칼리토금속의 할로겐화물, 희토류금속의 산화물 또는 희토류금속의 할로겐화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 물질인 것이 바람직하다.

바람직한 알칼리금속으로는, 예를 들면 Li(리튬, 일함수: 2.93eV), Na(나트륨, 일함수: 2.36eV), K(칼륨, 일함수: 2.3eV), Rb(루비듐, 일함수: 2.16eV) 및 Cs(세슘, 일함수: 1.95eV)을 들 수 있다. 또한 팔호안의 일함수 값은 문헌[화학편람, 기초편II, P493, 일본화학회 편]에 기재된 것이고, 하기에서도 마찬가지이다.

또한, 바람직한 알칼리토금속으로는, 예를 들면 Ca(칼슘, 일함수: 2.9eV), Mg(마그네슘, 일함수: 3.66eV), Ba(바륨, 일함수: 2.52eV), 및 Sr(스트론튬, 일함수: 2.0 내지 2.5eV)을 들 수 있다. 또한 스트론튬의 일함수 값은 문헌[반도체 디바이스의 물리, N. Y. 와이로-1969년, P366]에 기재되어 있다.

또한, 바람직한 희토류금속으로는, 예를 들면 Yb(이테르븀, 일함수: 2.6eV), Eu(유로븀, 일함수: 2.5eV), Gd(가도븀, 일함수: 3.1eV) 및 En(에르븀, 일함수: 2.5eV)을 들 수 있다.

또한, 바람직한 알칼리금속 산화물로는, 예를 들면  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{LiO}$  및  $\text{NaO}$ 를 들 수 있다.

또한, 바람직한 알칼리토금속 산화물로는, 예를 들면  $\text{CaO}$ ,  $\text{BaO}$ ,  $\text{SrO}$ ,  $\text{BeO}$  및  $\text{MgO}$ 를 들 수 있다.

또한, 바람직한 알칼리금속의 할로겐화물로는, 예를 들면  $\text{LiF}$ ,  $\text{NaF}$  및  $\text{KF}$ 와 같은 불소화물 이외에,  $\text{LiCl}$ ,  $\text{KCl}$  및  $\text{NaCl}$ 을 들 수 있다.

또한, 바람직한 알칼리토금속의 할로겐화물로는, 예를 들면  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$ ,  $\text{SrF}_2$ ,  $\text{MgF}_2$ ,  $\text{BeF}_2$ 와 같은 불소화물 및 불소화물 이외의 할로겐화물을 들 수 있다.

또한, 바람직한 환원성 도판트로서 알칼리금속이 배워진 방향족 화합물도 들 수 있다. 이러한 알칼리금속이 배워진 방향족 화합물은, 예를 들면 하기 화학식 3에 나타난 구조식으로 표시된다:

#### [화학식3]



상기 식에서, A는 알칼리금속을 나타내고,  $\text{Ar}^{6-}$ 은 탄소수가 10 내지 40개인 방향족 화합물이다.

상기 화학식 3에 표시된 방향족 화합물로는, 예를 들면 안트라센, 나프탈렌, 디페닐안트라센, 터페닐, 퀴터페닐, 산크페닐, 세크시페닐 및 그의 유도체를 들 수 있다.

다음으로 전자주입부에 있어서 환원성 도판트의 첨가량에 대해 설명한다. 전자주입부를 구성하는 재료 전체를 100중량%로 하는 경우에 환원성 도판트의 첨가량을 0.01 내지 50중량% 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다. 환원성 도판트의 첨가량이 0.01중량% 미만인 경우, 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되거나 수명이 단축되는 경향이 있다. 한편, 환원성 도판트의 첨가량이 50중량%를 초과하는 경우, 반대로 발광 휘도가 저하되거나 수명이 단축되는 경향이 있다.

따라서, 발광 휘도 및 수명의 균형이 보다 양호하게 되는 관점에서, 환원성 도판트의 첨가량을 0.2 내지 20중량% 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다.

또한, 환원성 도판트의 첨가량에 있어서, 방향족 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율을 1:20 내지 20:1(몰비) 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다. 전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율이 이러한 범위 밖에 있다면, 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되거나 수명이 단축되는 경향이 있다.

따라서, 방향족 고리 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율을 1:10 내지 10:1(몰비) 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하고, 1:5 내지 5:1 범위내의 값으로 하는 것이 더욱 바람직하다.

전자친화력 또한, 제 1 실시 형태에 따른 전자주입부의 전자친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다. 전자친화력 값이 1.8eV 미만이면 전자주입성이 저하되어 구동전압의 상승 및 발광효율의 저하를 초래하는 경향이 있고, 한편, 전자친화력 값이 3.6eV를 초과하면, 발광효율이 낮은 착체가 쉽게 발생하지 않거나 불로킹 집합의 발생을 효율적으로 억제할 수 있다.

따라서, 전자주입부의 전자친화력을 1.9 내지 3.0eV 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하고, 2.0 내지 2.5eV 범위내의 값으로 하는 것이 더욱 바람직하다.

또한, 전자주입부와 발광부의 전자친화력의 차이를 1.2eV 이하의 값으로 하는 것이 바람직하고, 0.5eV 이하의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다. 이런 전자친화력의 차이가 작으면 전자주입부에서 발광부로 전자주입이 용이해지고 고속응답이 가능한 유기 EL 소

자로 할 수 있다.

유리전이점또한, 제 1 실시 형태에 있어서, 전자주입부의 유리전이점(유리전이온도)을 100℃ 이상의 값으로 하는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 105 내지 200℃ 범위내의 값으로 한다.

이와 같이 전자주입부의 유리전이점을 제한함으로써, 유기 EL 소자의 내열 온도를 용이하게 85℃ 이상으로 할 수 있다. 따라서, 발광시에 전류주입층에서 발광부로 전류가 주입되고 줄열이 발생하는 때에도, 전자주입부가 단시간에 파손되는 경향이 감소하게 되어 유기 EL 소자의 수명 연장을 도모할 수 있다.

또한 전자주입부의 유리전이점은 전자주입부를 구성하는 성분에 대해서, 시차열주사형 열량계(DSC)를 사용하여 질소기류중에서 승온속도 10℃/분의 조건으로 가열한 경우에 취득되는 비열 변화 곡선에서 비열 변화점으로 구할 수 있다. 이점은 다른 실시 형태 및 실시예에 있어서도 마찬가지이다.

에너지 차이또한, 제 1 실시 형태에 있어서 전자주입부의 에너지 차이(결합 차이 에너지)를 2.7eV 이상의 값으로 하는 것이 바람직하고, 3.0eV 이상의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다.

이와 같이, 에너지 차이의 값을 특정값 이상, 예를 들면 2.7eV 이상으로 크게 하면 정공이 발광부를 초과하여 전자주입부로 이동하는 것이 적어지게 된다. 따라서, 정공과 전자의 재결합의 효율이 향상되어 유기 EL 소자의 발광 휘도가 높아짐과 동시에 전자주입부 자체가 발광하는 것을 피할 수 있다.

전자주입부의 구조또한, 제 1 실시 형태에 있어서 전자주입부의 구조에 대해서도 특히 제한되는 것은 아니며, 단층구조로 한정되지 않고, 예를 들면 이중 구조 또는 삼층 구조라도 좋다. 또한, 전자주입부의 두께에 대해 특히 제한하는 것은 아니지만 예를 들면 0.1nm 내지 1μm 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 50nm 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다.

전자주입부의 형성 방법다음에, 전자주입부를 형성하는 방법에 대해서 설명한다. 전자주입부의 형성 방법에 대해서는, 균일한 두께를 갖는 박막층으로 형성하려면 특히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면 증착법, 스프인코트법, 게스트법, LB법 등의 공지된 방법을 적용할 수 있다.

또한, 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물과 환원성 도판트는 동시 증착하는 것이 바람직하지만 이런 증착법에 대해서는 제 6 실시 형태에서 상술한다.

또한, 전자주입부와 발광부의 형성 방법을 일치시키는 것이 바람직하다. 예를 들면 발광부를 증착법으로 형성한 경우에는 전자주입부도 증착법으로 형성하는 것이 바람직하다. 이와 같이 동일한 방법으로 제조하면 전자주입부와 발광부를 연속적으로 제조할 수 있기 때문에, 설비의 간략화 및 정산시간의 단축을 도모하는 데에 유리하다. 또한, 전자주입부와 발광부가 산화될 기회가 적어지기 때문에 유기 EL 소자의 발광 휘도를 향상시키는 것도 가능하게 된다.

(2) 발광부 구성재료 발광부의 구성재료로서 사용하는 유기 발광재료로는 하기의 3개의 기능을 함께 갖춘 것이 바람직하다: (a) 전하의 주입기능: 전기장 인가시에 양극 또는 정공주입층으로부터 정공을 주입할 수 있는 한편, 음극층 또는 전자주입부로부터 전자를 주입할 수 있는 기능 (b) 수송기능: 주입된 정공 및 전자를 전기장의 힘으로 이동시키는 기능 (c) 발광기능: 전자와 정공이 재결합하는 장소를 제공하여 이들을 발광하게 지속시키는 기능다만, 상기 (a) 내지 (c)의 각 기능을 모두 함께 갖춘 것은 반드시 필요한 것은 아니다. 예를 들면 정공의 주입 수송성이 전자의 주입 수송성보다 크게 뛰어난 것중에서도 유기 발광 재료로서 적합한 것이 있다. 본 발명의 목적중 하나는 발광부로의 전자 이동을 촉진시켜 전압을 저하시키는 것이다.

이와 같은 유기 발광 재료로는 벤조티아졸계, 벤조이미다졸계, 벤조옥사졸계 등의 헹광중핵제 및 스티릴벤젠계 화합물, 8-퀴놀리놀 유도체를 배위자로 하는 금속착체를 적당한 것으로 들 수 있다.

또한 디스티릴아릴렌 골격의 유기 발광 재료, 예를 들면, 4,4'-비스(2,2'-디페닐비닐)비페닐 등을 호스트로 하고, 당해 호스트에 청색에서 적색까지의 강한 헹광 색소, 예를 들면 쿠마린계 또는 호스트와 동류의 색소를 도핑시킨 것도 유기 발광 재료로서 바람직하다.

또한, 뛰어난 밀착성이 얻어져서 전자주입 영역에서 발광부로 부드럽게 전자가 이동할 수 있음과 동시에 기계적 강도를 향상시킬 수 있다는 관점에서, 발광부의 구성 재료와 전자주입부의 구성재료를 부분적으로 일치시켜서 질소 원자를 포함하지 않은 동일한 종류의 방향족 고리 화합물을 발광부와 전자주입부 양쪽에 사용하는 것이 바람직하다.

또한, 발광부와 전자주입부에서 동일한 종류의 방향족 고리 화합물이 각각에 있어서 50중량% 이상인 것이 바람직하고, 60중량% 이상인 것이 보다 바람직하다.

형성방법다음으로 발광부를 형성하는 방법에 대해서 설명한다. 예를 들면, 증착법, 스프인코트법, 게스트법, LB법 등의 공지된 방법을 적용할 수 있다.

또한, 상술한 바와 같이 전자주입부와 발광부는 동일한 방법으로 형성시키는 것이 바람직하고, 예를 들면 전자주입부를 증착법으로

제조하는 경우에는 발광부도 증착법으로 제조하는 것이 바람직하다.

또한, 발광부는 기체 상태의 재료 화합물에서 침착되어 형성된 박막 및 용액 상태 또는 액체 상태의 재료 화합물에서 고체화되어 형성된 막인 분자퇴적막으로 하는 것이 바람직하다. 통상적으로, 이러한 분자퇴적막은 LB법에 의해 형성되는 박막(분자계 적막)과는 응집 구조 및 고차구조의 상이점 및 그것에서 기인하는 기능적인 상이점에 의해 구분할 수 있다. 또한, 수지 등의 결합제와 유기 발광재료를 용제에 용해시켜 용액으로 한 후, 그것을 스핀코트법 등에 의해 박막화시킴으로써 발광부를 형성할 수 있다.

발광부의 막두께와 같이 하여 형성된 발광부의 막두께에 대해서는 특히 제한은 없고, 상황에 따라서 적당히 선택할 수 있지만, 5nm 내지 5 $\mu$ m 범위내의 값이 바람직하다. 발광부의 막두께가 5nm 미만으로 되면, 발광 휘도가 저하되는 경향이 있고, 한편 발광부의 막두께가 5 $\mu$ m를 초과하면 인가 전압의 값이 높아지는 경향이 있다. 따라서, 발광부의 막두께를 10nm 내지 3 $\mu$ m 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하고, 20nm 내지 1 $\mu$ m 범위내의 값으로 하는 것이 더욱 바람직하다.

(3) 전극양극층양극층으로는 일함수가 큰(예를 들면, 4.0eV 이상) 금속, 합금, 전기전도성 화합물 또는 그의 혼합물을 사용하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 인듐틴옥사이드(ITO), 인듐, 주석, 산화아연, 금, 백금, 팔라듐 등의 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 조합하여 사용할 수 있다.

또한, 양극층의 막두께도 특히 제한되는 것은 아니지만, 10 내지 1000nm 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하고, 10 내지 200nm 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다.

또한, 양극층에 관해서는 발광부에서 방사된 광을 외부에 유효하게 빼낼 수 있도록 실질적으로 투명한 것, 보다 구체적으로는 광투과율이 10% 이상의 값인 것이 바람직하다.

음극층한편, 음극층에는 일함수가 작은(예를 들면, 4.0eV 미만) 금속, 합금, 전기 전도성 화합물 또는 그의 혼합물을 사용하는 것이 바람직하다. 구체적으로는 마그네슘, 알루미늄, 인듐, 리튬, 나트륨, 은 등의 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 조합하여 사용할 수 있다.

또한 음극층의 막두께도 특별히 제한되는 것은 아니지만, 10 내지 1000nm 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하고, 10 내지 200nm 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다.

(4) 기타또한, 도 1에는 나타나지 않지만, 유기 EL 소자의 수분 및 산소의 침입을 방지하기 위한 밀봉층을 소자 전체를 덮을 수 있도록 설치하는 것도 바람직하다.

바람직한 밀봉층의 재료로는 테트라플루오로에틸렌과 1종 이상의 공단량체를 포함한 단량체 혼합물을 공중합시켜 수득된 공중합체; 공중합 주쇄중에 고리상 구조를 갖는 불소 함유 공중합체; 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리메틸메타크릴레이트, 폴리이미드, 폴리우레아, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리클로로트리플루오로에틸렌, 폴리디클로로디플루오로에틸렌 또는 클로로트리플루오로에틸렌과 디클로로디플루오로에틸렌의 공중합체; 흡수율 1% 이상의 흡수성 물질; 흡수율 0.1% 이하의 방습성 물질; In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, Al, Ti, Ni 등의 금속; MgO, SiO<sub>2</sub>, SiO

<sub>2</sub>, GeO, NiO, CaO, BaO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> 등의 금속산화물; MgF<sub>2</sub>, LiF, AlF<sub>3</sub>, CaF<sub>2</sub> 등의 금속 불소화물; 퍼플루오로알칸, 퍼플루오로아민, 퍼플루오로폴리에테르 등의 액상 불소화탄소; 및 당해 액상 불소화 탄소에 수분 및 산소를 흡착한 흡착제를 분산시킨 조성물 등을 들 수 있다.

또한, 밀봉층의 형성에 있어서는 진공증착법, 스핀코트법, 스퍼터링법, 게스트법, MBE(분자선 적층 성장(epitaxy))법, 클러스터 이온 빔 증착법, 이온 플레이팅법, 플라즈마중합법(고주파 여기 이온 플레이팅법), 반응성 스퍼터링법, 플라즈마 CVD법, 레이저 CVD법, 열 CVD법, 가스소스 CVD법 등을 적당히 채용할 수 있다.

제 2 실시 형태다음으로, 본 발명의 유기 EL 소자에 있어서 제 2 실시 형태에 대해 설명한다. 제 2 실시 형태는 제 1 실시 형태와 동일하게, 도 1로 표시되는 것과 같이 양극층 10, 발광부 12, 전자주입부 14 및 음극층 16을 기판(도시되지 않음) 위에 차례로 적층시킨 구조를 갖고 있다.

그리고, 제 2 실시 형태는 제 1 실시 형태와 달리 전자주입부 14가 전자수송성 화합물 및 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트로 구성되어 있는 점에서 상이하다. 따라서, 하기의 설명에서는 전자수송성 화합물 및 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트에 대해서 중심으로 설명하고 그의 다른 구성에 대해서는 제 1 실시 형태와 동일한 구성 및 유기 EL 소자의 분야에 있어서 일반적으로 공지된 구성을 채택할 수 있다.

전자수송성 화합물 제 2 실시 형태에 있어서, 전자주입부에는 전자수송성 화합물로서 제 1 실시형태와 동일한 질소 원자를 포함하지 않는 방향족 고리 화합물을 함유할 수도 있고, 또한 질소 함유 복소환 화합물을 함유하는 유기화합물(단순하게 질소 함유 복소환 화합물로 부르는 경우가 있다)을 포함하는 것도 바람직하다.

즉, 제 2 실시 형태에 있어서는 제 1 실시 형태와 달리 특히 환원성이 큰 환원성 도판트를 사용하기 때문에, 음극에서 주입된 전자를

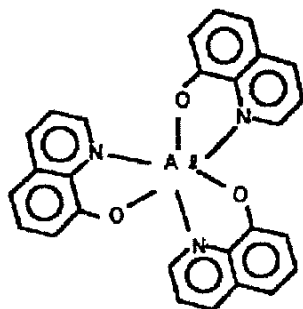
발광부로 전달하는 기능을 갖고 있는 화합물이면 널리 사용할 수 있고, 전자수송성 화합물로서 질소함유 복소환 화합물을 사용하여도 발광부의 재료와 반응하는 것을 효율적으로 억제할 수 있다. 따라서, 전자주입부에 있어서 전하 이동 착체 또는 엑시플렉스의 발생을 효율적으로 방지하여 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상 및 수명연장을 도모할 수 있다.

여기서, 전자주입부에 사용하는 질소 함유 복소환 화합물은 질소 원자가 존재하는 복소환을 갖는 화합물로 정의되지만, 구체적으로 질소 함유 착체 및 질소 함유 고리 화합물을 들 수 있다. 질소 함유 착체 및 질소 함유 고리 화합물은 전자친화력이 2.7eV 이상으로 크고, 또한 전하이동도도 10

$^{-6}\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{S}$  이상으로 빠르기 때문이다.

그중 바람직한 질소 함유 착체로는 8-퀴놀리놀 유도체를 배위자로 하는 금속착체, 예를 들면 하기 화학식 4로 표시되는 트리스(8-퀴놀리놀)Al 착체, 트리스(5,7-디클로로-8-퀴놀리놀)Al 착체, 트리스(5,7-디브로모-8-퀴놀리놀)Al 착체, 트리스(2-메틸-8-퀴놀리놀)Al 착체, 트리스(5-메틸-8-퀴놀리놀)Al 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)Zn 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)In 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)Mg 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)Cu 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)Ca 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)Sn 착체, 트리스(8-퀴놀리놀)Ga 착체 및 트리스(8-퀴놀리놀)Pb 착체 등의 1종 단독 또는 2종 이상의 조합을 들 수 있다:

[화학식4]

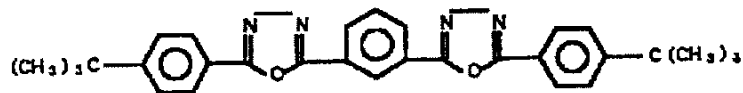


또한, 질소 함유 착체중 바람직한 프탈로시아닌 유도체로는 예를 들면 금속을 함유하지 않는 프탈로시아닌, Cu프탈로시아닌, Ni프탈로시아닌, Mg프탈로시아닌, Pb프탈로시아닌, Ti프탈로시아닌, Ga프탈로시아닌, CuO프탈로시아닌 등의 1종 단독 또는 2종 이상의 조합을 든다.

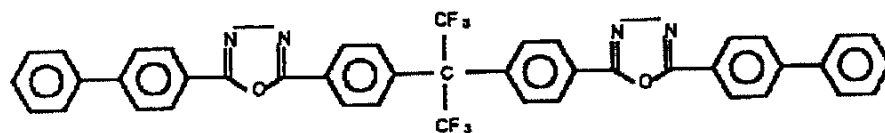
또한, 바람직한 질소 함유 고리 화합물로는 옥사디아졸 유도체, 티아디아졸 유도체, 트리아졸 유도체, 퀴놀살린 유도체 및 퀴놀린 유도체로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 화합물을 들 수 있다.

이들중 바람직한 옥사디아졸 유도체의 대표적인 예를 하기 화학식 5 및 6에, 바람직한 티아디아졸 유도체의 대표적인 예를 하기 화학식 7에, 바람직한 트리아졸 유도체의 대표적인 예를 하기 화학식 8에, 퀴놀살린 유도체의 대표적인 예를 하기 화학식 9에, 퀴놀린 유도체의 대표적인 예를 하기 화학식 10에 각각 나타낸다.

[화학식5]



[화학식6]



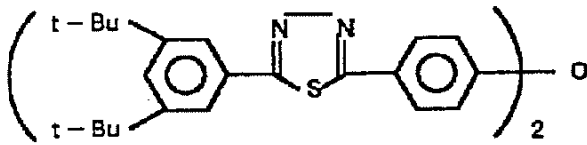
[화학식7]



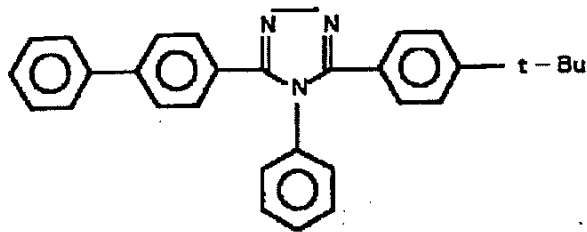




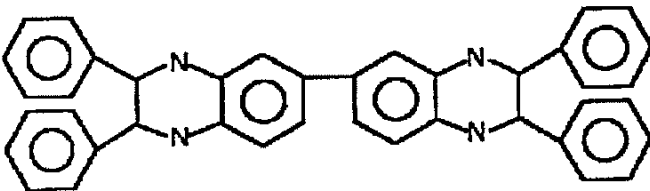




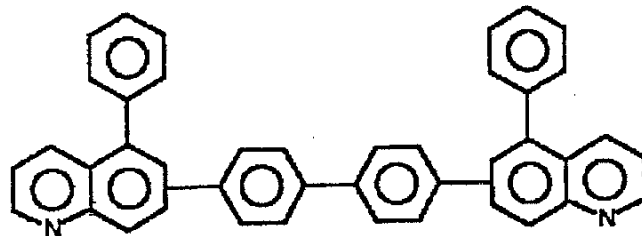
[화학식8]



[화학식9]



[화학식10]



또한, 안트론 유도체, 플레오레닐메탄 유도체, 카보디이미드, 나프탈렌페릴렌 등의 복소환 테트라카본산 무수물 또는 일본 특허 공개 제 84-194393 호에 발광층 재료로서 기재된 전자전달성 화합물을 사용하는 것도 바람직하다.

일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트제 2 실시 형태에 있어서 전자주입부는 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트를 함유하고 있다. 여기에서 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트란 일함수가 2.9eV 이하이고, 또한 전자수송성 화합물이 산화되는 경우에도 일정한 환원이 가능한 물질로 정의된다. 따라서 일함수가 2.9eV 이하이면, 제 1 실시 형태에 있어서 예시된 환원성 도판트인 알칼리금속, 알칼리토금속, 희토류금속, 알칼리금속의 산화물, 알칼리금속의 할로겐화물, 알칼리토금속의 산화물, 알칼리토금속의 할로겐화물, 희토류금속의 산화물 또는 희토류금속의 할로겐화물로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 물질을 적당히 사용할 수 있다.

또한, 보다 구체적으로 일함수가 2.9eV 이하인 바람직한 환원성 도판트로서는 Na(일함수: 2.36eV), K(일함수: 2.28eV), Rb(일함수: 2.16eV) 및 Cs(일함수: 1.95eV)으로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 알칼리금속 및 Ca(일함수: 2.9eV), Sr(일함수: 2.0 내지 2.5eV) 및 Ba(일함수: 2.52eV)으로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 알칼리토금속을 들 수 있다.

이들중, 보다 바람직한 환원성 도판트는 K, Rb 및 Cs로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 알칼리금속이고, 더욱 바람직한 것은 Rb 또는 Cs이고, 가장 바람직한 것은 Cs이다. 이들 알칼리금속은 특히 환원 능력이 크고, 전자주입부로의 비교적 소량의 첨가에 의해

유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상 및 수명의 연장이 도모된다.

또한, 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트로서 이들 2종 이상의 알칼리금속의 조합도 바람직하고, 특히 Cs를 포함한 조합, 예를 들면 Cs와 Na, Cs와 K, Cs와 Rb 또는 Cs와 Na와 K의 조합인 것이 바람직하다. Cs를 조합하여 포함함으로써 환원 능력을 효율적으로 발휘할 수 있고, 전자주입부의 첨가에 의해 유기 EL 소자에 있어서 발광 휘도의 향상 및 수명 연장이 도모된다.

다음으로, 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트의 첨가량에 대해서 설명한다. 이 환원성 도판트의 첨가량은 제 1 실시 형태와 마찬가지로 전자주입부를 구성하는 재료에 대하여 0.1 내지 50중량% 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 20중량% 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다.

또한, 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트의 첨가량에 있어서, 전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율을 1:20 내지 20:1 (몰비) 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다. 전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율이 이러한 범위 밖에 있으면 유기 EL 소자의 발광 휘도가 저하되거나 수명이 단축되는 경향이 있다.

따라서, 전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가 비율을 1:10 내지 10:1(몰비) 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하고, 1:5 내지 5:1 범위내의 값으로 하는 것이 더욱 바람직하고, 가장 바람직한 것은 1:3 내지 3:1 범위내의 값으로 하는 것이다.

전자전하화력 또한, 제 2 실시 형태에 있어서 전자주입부의 전자전하화력을 제 1 실시 형태와 동일하게 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하고, 1.9 내지 3.0eV 범위내의 값으로 하는 것이 보다 바람직하며, 2.0 내지 2.5eV 범위내의 값으로 하는 것이 더욱 바람직하다. 전자전하화력의 값이 이러한 범위 밖에 있으면 발광 효율이 낮은 착체가 쉽게 발생하거나 불로킹 접합의 발생을 억제하는 것이 힘들게 되는 경향이 있다.

또한, 전자주입부의 전자전하화력은 전자주입부를 구성하는 전자수송성 화합물 및 환원성 도판트의 종류 또는 혼합 비율등을 변경함으로써 적절히 조절할 수 있다.

또한, 제 2 실시 형태의 전자주입부에 있어서도 제 1 실시 형태와 마찬가지로 전자주입부의 전자전하화력과 발광부의 전자전하화력의 차이를 0.5eV 이하의 값으로 하는 것이 바람직하고, 0.2eV 이하의 값으로 하는 것이 보다 바람직하다. 이런 전자전하화력의 차이가 작은 만큼 전자주입부에서 발광부로의 전자주입이 용이해지고 고속응답 가능한 유기 EL 소자로 할 수 있기 때문이다.

유리전이점에 대해서 또한, 제 2 실시 형태의 전자주입부의 유리전이점에 대해서도, 제 1 실시 형태와 마찬가지로 100℃ 이상의 값으로 하는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 105 내지 200℃ 범위내의 값으로 한다.

제 3 실시 형태 다음으로, 도 2를 참조하여 본 발명의 제 3 실시 형태에 대해서 설명한다. 도 2는 제 3 실시 형태의 유기 EL 소자 102의 단면도이고 양극층 10, 정공주입수송층 18, 발광부 12, 전자주입부 14 및 음극층 16을 차례로 적층시킨 구조를 갖고 있다.

따라서, 본 유기 EL 소자 102는 양극층 10과 발광부 12의 사이에 정공주입 수송층 18을 삽입하고 있다는 점을 제외하고는 제 1 및 제 2 실시 형태의 유기 EL 소자 100과 동일한 구조를 갖고 있다.

따라서, 하기의 설명은 제 3 실시 형태의 특징적인 부분인 정공주입 수송층 18에 대한 것이고, 그와 다른 구성 부분, 예를 들면 전자주입부 14 등에 대해서는 제 1 또는 제 2 실시 형태와 동일하게 구성할 수 있다.

제 3 실시 형태의 정공주입 수송층 18은 정공주입층과 실질적으로 동일하도록 정공을 부드럽게 주입하는 기능을 갖고 있는 것 외에, 주입된 정공을 효율적으로 수송하는 기능도 갖고 있는 것이다. 따라서, 정공주입 수송층 18을 설치함으로써 정공의 주입 및 발광부로의 이동이 용이해지고, 유기 EL 소자의 고속응답이 가능해진다.

여기에서 정공주입 수송층 18은 유기재료 또는 무기재료로 형성되어 있다. 바람직한 유기재료로는, 예를 들면 디아민화합물, 디아민 함유 올리고머 및 티오펜 함유 올리고머를 들 수 있다. 또한, 바람직한 무기재료로는, 예를 들면 비정질 실리콘( $\alpha$ -Si),  $\alpha$ -SiC, 미정질 실리콘( $\mu$ C-Si),  $\mu$ C-SiC, II 내지 VI족 화합물, III 내지 V족 화합물, 비정질탄소, 결정질탄소 및 다이아몬드를 들 수 있다.

또한, 정공수송층 18은 1층 구조로 제한되지 않고, 예를 들면 2층 구조 또는 3층 구조이어도 좋다.

또한, 정공수송층 18의 두께에 대해서 특별히 제한하는 것은 아니지만, 예를 들면 0.5nm 내지 5 $\mu$ m 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다.

제 4 실시 형태 다음으로 도 3을 참조하여 본 발명의 제 4 실시 형태에 대해서 설명한다. 도 3은 제 4 실시 형태의 유기 EL 소자 104의 단면도이고, 양극층 10, 정공주입 수송층 18, 발광부 12, 전자주입부 14, 제 1 계면층 20 및 음극층 16을 차례로 적층한 구조를 갖고 있다.

본 유기 EL 소자는 전자주입부 14와 음극층 16 사이에 제 1 계면층 20을 삽입하고 있다는 점을 제외하고는 제 3 실시 형태의 유기 EL 소자 102와 동일한 구조를 갖고 있다.

따라서, 하기 설명은 제 4 실시 형태의 특징적인 부분인 제 1 계면층에 대한 것이고, 그외의 다른 구성 부분에 대해서는 제 1 내지 3 실시 형태와 동일한 구성 또는 유기 EL 소자 분야에서 일반적으로 공지된 구성으로 할 수 있다.

제 4 실시 형태의 제 1 계면층은 전자주입성을 높이는 기능을 갖고 있다. 따라서 제 1 계면층을 설치함으로써 전자의 주입 및 발광부로의 이동이 용이해지고 유기 EL 소자의 고속응답이 가능해진다.

여기에서 제 1 계면층은 전자주입성을 갖는 재료, 예를 들면 알칼리금속 화합물, 알칼리토금속 화합물, 알칼리금속이 함유된 비정질 또는 알칼리금속이 함유된 미세결정을 이용하는 것이 바람직하다.

보다 구체적으로, 바람직한 알칼리금속 화합물로는, 예를 들면 LiF, Li<sub>2</sub>O, LiO 및 LiCl이 있다. 또한, 바람직한 알칼리토금속 화합물로는, 예를 들면 BaO, SrO, MgO, MgF

2, SrCl<sub>2</sub>이 있다.

또한, 제 1 계면층은 1층 구조에 한정되지 않고, 예를 들면 2층 구조 또는 3층 구조이어도 좋다. 또한, 제 1 계면층의 막두께에 대해서도 특히 제한하는 것은 아니지만, 예를 들면 0.1nm 내지 10μm 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다.

제 5 실시 형태다음으로 도 4를 참조하여 본 발명의 제 5 실시 형태에 대해서 설명한다. 도 4는 제 5 실시 형태의 유기 EL 소자 106의 단면도이고, 양극층 10, 제 2 계면층 24, 정공주입 수송층 18, 발광부 12, 전자주입부 14 및 음극층 16을 차례로 적층한 구조를 갖고 있다.

본 유기 EL 소자 106은 양극 16과 정공주입 수송층 18의 사이에 제 2 계면층 24를 삽입하고 있다는 점을 제외하고는 제 3 실시 형태의 유기 EL 소자 102와 동일한 구조를 갖는다. 따라서, 하기 설명은 제 5 실시 형태의 특징적인 부분인 양극 16과 정공주입 수송층 18 사이에 설치된 제 2 계면층 24에 대한 것이고, 그외 다른 구성부분에 대해서는 제 1 내지 4 실시 형태와 동일한 구성 또는 유기 EL 소자 분야에 일반적으로 공지된 구성으로 할 수 있다.

제 5 실시 형태의 제 2 계면층 24는 양극 16에서의 정공주입성을 높이는 기능을 갖고 있다. 따라서, 제 2 계면층을 설치함으로써 정공의 주입 및 발광부로의 이동이 용이해지고, 유기 EL 소자의 고속응답이 가능해진다.

여기에서, 제 2 계면층의 구성 재료로는 풀리아닐린, 비정질탄소 또는 프탈로시아닌류 등을 이용할 수 있다. 또한, 제 2 계면층은 1층 구조에 제한하지 않고, 예를 들면 2층 구조 또는 3층 구조이어도 좋다. 또한, 제 2 계면층의 막두께에 대해서도 특별히 제한하는 것은 아니지만, 예를 들면 0.5nm 내지 5μm 범위내의 값으로 하는 것이 바람직하다.

제 6 실시 형태다음으로 도 7 내지 9를 참조하여 본 발명의 제 6 실시 형태에 대해서 설명한다. 제 6 실시 형태는 전자주입부 등이 큰 면적이어도 구성재료의 조성비를 균일하게 하여 유기 EL 소자의 구동전압의 산란을 저하시키고 수명의 균일화를 도모함과 동시에, 공간 절약이 가능한 유기 EL 소자의 제조 방법을 제공하는 것이다.

즉, 도 7 및 도 8에 나타낸 바와 같은 진공 증착 장치 201을 하나의 예로서 이용하여 기판 203에 대향시켜 배치한 복수의 증착원 212A 내지 212E으로부터 상이한 증착재료를 동시에 증발시켜 막의 제조를 수행하는 유기 EL 소자용 박막층의 증착방법으로서, 기판 203에 당해 기판 203을 자전시키기 위한 회전축선 213A를 설정하고 증착원 212A 내지 212E를 각각 기판 203의 회전축선 213A로부터 분리된 위치에 배치하여 기판 203을 자전시키면서 증착을 수행함을 특징으로 한다.

여기에서 도 7 및 도 8에 나타낸 진공 증착 장치 201은 진공조 210, 이 진공조 210 내의 상부에 설치된 기판 203호를 고정하기 위한 기판홀더 211 및 이 기판홀더 211의 아래쪽에 대향 배치시킨 증착재료를 수용하기 위한 복수(6개)의 증착원 212A 내지 212F를 포함하여 구성되어 있다. 진공조 210은 배기수단(도시하지 않음)에 의해 내부를 일정한 감압상태로 유지할 수 있도록 되어 있다. 또한 증착원의 수는 도면상에 6개로 표시되어 있지만, 그에 한정되는 것은 아니고 5개 이하이어도 되거나, 또는 7개 이상이어도 된다.

또한, 기판홀더 211은 기판 203의 주변부를 지지하는 보지부 212를 갖추고 진공조 210내에서 기판 203을 수평으로 보지하도록 구성되어 있다. 기판홀더 211의 상면의 중앙부에는 기판 203을 회전(자전)시키기 위한 회전축부 213이 수직 방향으로 세워져 설치되어 있다. 회전축부 213에는 회전구동수단인 모터 214가 접속되고 모터 214의 회전동작에 의해 기판홀더 211에 보지된 기판 203이 당해 기판홀더 211과 함께 회전축부 213을 회전중심으로 하여 자전하도록 되어 있다. 즉, 기판 203의 중심에는 회전축부 213에 의한 회전축선 213A가 수직 방향으로 설정되어 있다.

다음에 이와 같이 구성된 진공 증착 장치 201을 이용하여 전자주입부 14를 기판 203 위에서 제조하는 방법에 대해서 구체적으로 설명한다.

우선, 도 7 및 도 8에 나타낸 바와 같은 평면 정사각형의 기판 203을 준비하고, 기판 203을 기판홀더 211의 보지부 212에 묶어 고정하여 수평 상태로 한다. 도 8에 있어서 해칭이 되어 있는 부분이 기판 203이고, 기판 203이 수평 상태로 보지되고 있는 것이 이것을 나타내고 있다.

여기에서 전자주입부 14를 제조하는데 있어서, 가상의 원 221 위에 인접하는 2개의 증착원 212B 및 212C에 전자수송성 화합물과 전자주입성 재료를 각각 수용시킨 후, 배기수단에 의해 진공조 210 내부를 특정한 진공도, 예를 들면  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa로 될 때까지 감압한다.

다음으로 증착원 212B 및 212C를 가열하여 각 증착원 212B 및 212C로부터 각각 전자수송성 화합물 및 환원성 도판트를 동시에 증발시키면서, 모터 214를 회전 구동시켜 기판 203을 회전축선 213A에 따라 특정한 속도, 예를 들면 1 내지 100rpm으로 회전시킨다. 이와 같이 하여 기판 203을 자전시키면서 전자수송성 화합물 및 환원성 도판트를 공중착하여 전자주입부 14를 제조한다.

이 때 도 8에 나타낸바와 같이 증착원 212B 및 212C는 기판 203의 회전축선 213A에서 수평방향으로 특정 거리 M만큼 벗어난 위치에 설치되어 있기 때문에 기판 203의 회전에 의해 전자수송성 화합물 및 환원성 도판트의 기판 203으로의 입사 각도를 규칙적으로 변화시킬 수 있다.

따라서, 증착재료를 기판 203에 대해 하나의 모양으로 부착시킬 수 있어, 전자주입부 14 막의 면 내부에서 증착재료의 조성비가 균일하고, 예를 들면 농도불균형이  $\pm 10\%$ (몰한산)인 박막층을 확실하게 제조할 수 있다.

또한, 이와 같이 증착을 실시함으로써 기판 203을 공전시키지 않아도 되기 때문에 그 공간 및 설비가 불필요하게 되어, 최소한의 공간에서 경제적으로 막의 제조를 수행할 수 있다. 또한 기판을 공전시킨다는 것은 기판 외부에 존재하는 회전축의 돌레를 회전시키는 것을 말하고 자전시키는 경우보다도 넓은 공간이 필요하게 된다.

또한, 제 6 실시 형태의 제조 방법을 실시하는데 있어서, 기판 203의 형상은 특히 한정되지는 않지만, 예를 들면 도 7 및 도 8에 나타낸 바와 같이 기판 203이 단형의 평판상인 경우, 이 기판 203의 회전축선 213A를 중심으로 하는 가상원 221의 원주상에 따라서 복수의 증착원 212A 내지 212E를 배치하고 가상원 221의 반경을 M, 기판 203의 한 변의 길이를 L로 한 경우에,  $M > 1/2 \times L$ 을 만족하는 것이 바람직하다. 또한 기판 203의 변의 길이가 각각 동일하지 않고 상이한 경우에는 가장 긴 변의 길이를 L로 한다.

이와 같이 구성함으로써 복수의 증착원 212A 내지 212E로부터 기판 203에 대한 증착재료의 입사각도를 서로 동일하게 할 수 있기 때문에 증착재료의 조성비를 보다 용이하게 제어할 수 있다.

또한, 이와 같이 구성함으로써 증발재료가 기판 203에 대해서 일정한 입사각으로 증발되기 때문에 수직으로 입사하는 경우가 없어지게 되고 막의 면 내부에 있어서 조성비의 균일성을 한층 향상시킬 수 있다.

또한, 제 6 실시 형태의 제조 방법을 실시하는데 있어서, 도 7에 나타낸 바와 같이 복수의 증착원 212A 내지 212E를 기판 203의 회전축선 213A를 중심으로 하는 가상원 221의 원주상에 설치하는 방법은 본 발명의 전자수송성 화합물과 환원성 도판트와 같은 2종류 이상의 재료로 이루어진 혼합부를 균일한 조성비로 제조하는 경우에는 그들의 증착원을 서로 근접시킨 위치에 설치하는 것이 바람직하다. 또한, 조성비를 막두께 방향에서 상이하게 하는 경우에는 서로 떨어진 위치에 설치하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 증착원의 수를 n으로 하는 경우에 각 증착원을 원의 중심에서  $360^\circ/n$ 의 각도로 배치하는 것이 좋다.

다음에 제 6 실시 형태의 제조 방법에 의해 제조된 박막층의 균일성에 대해서 보다 상세하게 설명한다. 하나의 예로, 전자수송성 화합물로서 Alq를 사용하고 환원성 도판트로서 Cs를 사용하고, 도 9에 나타낸 기판 203을 5rpm으로 회전시키면서 막두께 약 1000 Å(설정값)의 박막층을 하기의 조건으로 동시증착하였다.

Alq의 증착속도: 0.2nm/s

Cs의 증착속도: 0.03nm/s

Alq/Cs의 막두께: 1000 Å(설정값)다음으로 도 9에 나타낸 유리 기판 203 위의 측정점(4A 내지 4M)에 있어서 수득된 박막층의 막두께를 식침식 막두께 측정기를 사용하여 측정하고 존재하는 Cs/Al의 조성비를 X선 광전자 분광장치(ESCA)를 사용하여 측정하였다. 또한, 도 9에 나타낸 유리 기판 203 위의 측정점(4A 내지 4M)은 기판 203의 표면을 미리 16등분하여 한 변의 길이 P가 50mm인 정사각형의 구획을 설정해서 이들 구획의 임의의 모서리(13개소)로 한 것이다. 수득된 결과를 표 1에 나타낸다.

[표 1]

측정점	막두께 (Å)	Cs/Al(%)
4A	1053	1.0
4B	1035	1.0
4C	1047	1.0

4D	1088	1.1
4E	1091	1.0
4F	1093	1.1
4G	1082	1.1
4H	1075	1.0
4I	1082	1.1
4J	1065	1.1
4K	1010	1.0
4L	1008	1.0
4M	1025	1.0

한편, 203을 최전시키지 않은 것 이외에는 제 6 실시 형태의 제조 방법과 동일하게 막두께 약 1000 Å(실정값)의 박막층을 형성하였다. 또한 증착조건에 대해서는 전술한 바와 같다. 다음으로, 수득된 박막층의 측정점(4A 내지 4M)에서의 막두께 및 Cs/Al의 조성비를 측정하여 결과를 표 2에 나타낸다.

### [#2]

측정점	막두께(Å)	Cs/Al(-)
4A	895	0.6
4B	941	1.1
4C	884	1.1
4D	911	0.7
4E	922	1.1
4F	1022	0.8
4G	919	1.2
4H	1015	1.3
4I	1067	0.7
4J	908	1.2
4K	895	0.5
4L	920	1.0
4M	950	1.1

이들 결과에서 분명해진 바와 같이 제 6 실시 형태의 제조 방법을 사용한 경우 기판 203 위의 측정점(4A 내지 4M)에서 막두께가 1008 내지 1091 Å 범위라고 하는 매우 균일한 막두께이고, 또한 Cs/Al의 조성비(몰비)가 1.0 내지 1.10(-)의 범위라고 하는 매우 균일한 조성비인 박막층이 수득되는 것이 확인되었다.

한편, 제 6 실시 형태와 상이한 제조 방법을 사용하는 경우 기판 203 위의 측정점(4A 내지 4M)에서 막두께가 884 내지 1067 Å 범위 내의 값이고, Cs/Al 조성비가 0.6 내지 1.2(-) 범위내의 값인 것이 확인되었다.

이상 설명한 실시 형태에 있어서는 본 발명을 특징의 조건으로 구성한 예에 대해서 설명했지만 본 실시 형태는 여러가지 변형을 수행할 수 있다. 예를 들면 전술한 실시 형태에 있어서는 발광부와 전자주입부를 개별적으로 설치했지만 발광부와 전자주입부를 합하여 하나의 층으로 하여도 좋다. 또한, 음극층과 양극층의 사이에 임의의 적합한 층을 삽입해도 좋다.

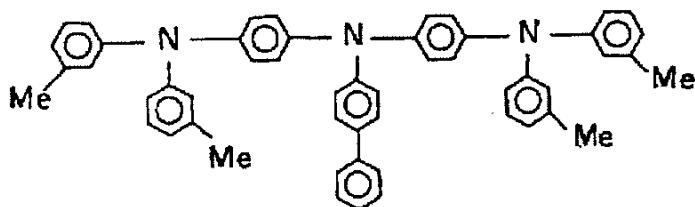
실시예 실시예 1 다음에 도 5 및 도 7, 8을 참조하면서, 본 발명의 실시예 1에 대해서 설명한다. 도 5에 나타낸 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조는 도 2에 나타낸 제 3 실시 형태의 유기 EL 소자 102의 구조에 상응한다. 다만 실시예 1의 유기 EL 소자 102a에 있어서는 정공주입 수송층 18을, 차례로 적층된 정공주입층 18a 및 정공수송층 18b로 구성하고 있다는 점에서 제 3 실시 형태의 유기 EL 소자 102와 다르다.

(1) 유기 EL 소자의 제조 준비 실시예 1의 유기 EL 소자 102a를 제조하는데 있어서는, 우선 막두께 1.1mm, 세로 200mm, 가로 200mm의 투명한 유리 기판 22 위에 양극층 10으로서 ITO의 투명 전극막을 형성하였다. 이하 유리 기판 22와 양극층 10을 합하여 기판 30(도 7 및 도 8에서는 203)으로 한다. 계속해서 기판 30을 이소프로필알콜로 초음파 세정하고, 또한 N

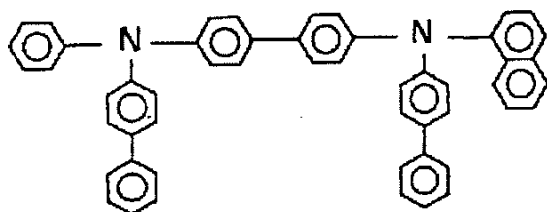
<sub>2</sub>(질소기체) 분위기하에서 건조시킨 후, UV(자외선) 및 오존을 사용하여 10분간 세정하였다.

다음으로 기판 30을 도 8에 나타난 바와 같이 진공증착장치 201의 진공조 210의 기판홀더 211에 장착함과 동시에 정공주입층 18a를 구성하는 정공주입성 유기물(HI-1)을 증착원 212A에, 정공수송층 18b를 구성하는 정공주입성 수송 유기물(HT-1)을 증착원 212B에, 전자주입부 및 발광부를 구성하는 질소를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물(EM-1)을 증착원 212C에, 전자주입부를 구성하는 환원성 도판트(Li)를 증착원 212D에, 음극을 구성하는 금속(Al)을 증착원 212E에 각각 수용시켰다.

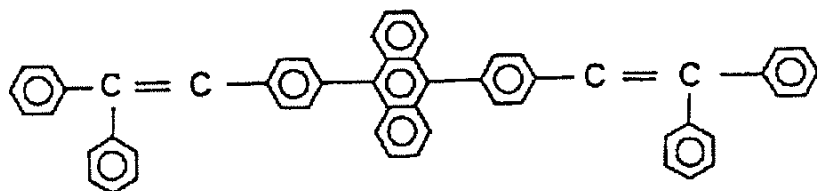
또한, 화학식 11로 나타내는 HI-1, 화학식 12로 나타내는 HT-1 및 화학식 13으로 나타내는 EM-1의 구조식은 각각 하기와 같다:  
[화학식11]



[화학식12]



[화학식13]



또한, EM-1의 유리전이점은 105℃이고, 그것을 포함하는 전자주입부의 전자친화력은 2.8eV이었다.

(2) 유기 EL 소자의 제조다음으로 진공조 210 내부를  $5 \times 10^{-5}$ Pa 이하의 진공도로 될 때까지 감압한 후, 기판 30의 양극층 10 위에 정공주입층 18a, 정공수송층 18b, 발광부 12, 전자주입부 14 및 음극층 16을 차례로 순차 적층하여 유기 EL 소자 102a를 수득하였다. 또한 이 때 정공주입층 18a의 형성으로부터 음극층 16의 형성까지는 한번도 진공상태를 없애지 않고 유기 EL 소자 102a를 제작하였다.

보다 구체적으로는 증착원 212A로부터 HI-1을 하기 조건으로 증발시켜서 양극층 10 위에 정공주입층 18a를 증착시키고, 계속해서 증착원 212B로부터 HT-1을 증발시켜서 정공주입층 18a 위에 정공수송층 18b를 증착시켰다. 이들의 증착시에 기판 30은 특별히 가열하거나 냉각하지 않았다.

HI-1의 증착속도: 0.1 내지 0.3nm/s

HI-1의 막두께: 60nmHT-1의 증착속도: 0.1 내지 0.3nm/s

HT-1의 막두께: 20nm 다음으로 증착원 212C로부터 유기 발광 재료로서의 EM-1을 정공주입층 18a의 제조시와 동일한 조건으로 증발시켜서 정공수송층 18b 위에 유기 발광부 12를 증착시켰다.

EM-1의 증착속도: 0.1 내지 0.3nm/s

EM-1의 막두께: 40nm다음으로 증착원 212C 및 증착원 212D로부터 하기에 나타낸 조건으로 각각 EM-1 및 Li를 동시에 증발시켜 유기 발광부 12 위에 전자주입부 14를 제조하였다.

EM-1의 증착속도: 0.1 내지 0.3nm/s

Li의 증착속도: 0.05 내지 0.01nm/s

EM-1/Li의 막두께: 20nm또한, 동시증착하는데 있어서 실시 형태 6에 나타낸 방법에 따랐다. 즉, 증착원 212C 및 212D는 기판 30 (203)의 회전축선 213A로부터 수평방향으로 30mm쯤 벗어난 위치에 각각 설치되어 있고, 그 상태에서 가열하여 각 증착원 212B 및 212C로부터 각각 EM-1 및 Li를 동시에 증발시킴과 동시에, 모터 214를 회전구동시켜 기판 203을 회전축선 213A에 따라 5rpm으로 자전시키면서 전자주입부 14를 제조하였다.

마지막으로 증착원 212D로부터 하기의 조건으로 Al을 증발시켜 전자주입부 14 위에 음극층 16을 증착시켰다.

Al의 증착속도: 1nm/sAl의 막두께: 200nm(3) 유기 EL 소자의 평가수득된 유기 EL 소자 102a의 음극층 16을 음(-)전극, 양극층 10을 양(+)전극으로 하여 양쪽 전극 사이에 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류 밀도는 하기 표 3에 나타낸 바와 같이 1.0mA/cm

<sup>2</sup>이고, 이 때의 휘도는 40cd/cm<sup>2</sup>이며, 발광색은 청색이었다.

또한, 본 소자 102a의 반감수명은 1000시간이었다. 또한 반감수명이라는 것은 휘도가 최대휘도의 반값으로 될 때까지 필요한 시간을 말한다. 예를 들면, 실시예 1에서는 휘도가 최대휘도 40cd/cm

<sup>2</sup>에서 그의 반값인 20cd/cm<sup>2</sup>으로 될 때까지 필요한 시간을 말한다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

### [표3]

실시 예	발광 부	전자주입부		전류밀도 (mA/cm <sup>2</sup> )	발광휘도 (cd/cm <sup>2</sup> )	전자친화력 (eV)	반감수명(시 간)
		재료	물비				
1	EM-1	EM-1/Li	1/1	1	40	2.8	1000
2	EM-1	EM-1/Ca	1/1	1.2	50	2.8	1500
3	EM-1	EM-1/Na	1/1	1	60	2.8	1600
4	EM-1	EM-1/K	1/1.3	4	146	2.2	1800
5	EM-1	EM-1/Cs	1/1	40	1000	2.0	2500
6	EM-1	EM-1/Cs	1/1.5	38	1300	2.0	3000
7	EM-1	EM-1/Cs	1/4.0	25	1100	2.0	1700
8	EM-1	EM-1/Cs/Na	1/1/0.5	40	1000	2.0	2500
9	EM-1	DFAD/Li	1/1	1.5	60	2.8	1800
10	EM-1	Alq/Cs	1/1	25	500	2.0	2500
11	Alq	Alq/Na	2/1	3	200	2.3	3000
12	EM-1	H1/Cs	1/1	5	700	2.5	1000
13	EM-1	H2/Sr	1/1	1.5	200	2.6	2000

실시예 2다음으로 본 발명의 실시예 2에 대해서 설명한다. 실시예 2의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조와 동일하고, 실시예 1과 동일하게 제조하였다. 다만 실시예 2에 있어서는 전자주입부에 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Ca(칼슘) 금속을 첨가하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 상기 표 3에 나타낸 바와 같이 1.2mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 50cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 2의 유기 EL 소자의 반감수명은 1500시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 3다음으로 본 발명의 실시예 3에 대해서 설명한다. 실시예 3의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조

와 동일하고, 실시예 1과 동일하게 제조하였다. 다만 실시예 3에 있어서는 전자주입부에 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Na(나트륨) 금속을 첨가하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 상기 표 3에 나타난 바와 같이 1.0mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 60cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 3의 유기 EL 소자의 반감수명은 1600시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 4다음으로 본 발명의 실시예 4에 대해서 설명한다. 실시예 4의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조와 동일하고, 실시예 1과 동일하게 제조하였다. 다만 실시예 4에 있어서는 전자주입부에 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 K(칼륨) 금속을, EM-1 1몰에 대해서 1.3몰 첨가하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 상기의 표 3에 나타난 바와 같이 4.0mA/cm

<sup>2</sup>이고, 발광휘도는 146cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 4의 유기 EL 소자의 반감수명은 1800시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 5 내지 7다음으로 본 발명의 실시예 5 내지 7에 대해서 설명한다. 실시예 5 내지 7의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조와 동일하고, 실시예 1과 동일하게 제조하였다. 다만 실시예 5 내지 7에 있어서는 전자주입부에 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Cs(세슘) 금속을, EM-1 1몰에 대해서 1몰(실시예 5), 1.5몰(실시예 6), 4.0몰(실시예 7)을 각각 첨가하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 실시예 5에 있어서는 40mA/cm

<sup>2</sup>이고, 실시예 6에 있어서는 38mA/cm<sup>2</sup>이고, 실시예 7에 있어서는 25mA/cm<sup>2</sup>이었다. 검토한 범위에서는 Cs 금속의 첨가량이 적을수록, 약간 전류밀도가 높은 경향이 보였다.

또한, 이 때의 발광휘도는 실시예 5에 있어서는 1000cd/cm<sup>2</sup>이고, 실시예 6에 있어서는 1300cd/cm<sup>2</sup>이고, 실시예 7에 있어서는 1100cd/cm<sup>2</sup>이었다.

또한, 유기 EL 소자의 반감수명에 대해서는 실시예 5는 2500시간이고, 실시예 6은 3000시간이고, 실시예 7은 1700시간이었다.

실시예 8다음으로 본 발명의 실시예 8에 대해서 설명한다. 실시예 8의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조와 동일하고, 실시예 1과 동일하게 제조하였다. 다만 실시예 8에 있어서는 전자주입부에 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Cs와 Na의 혼합물을 각각 EM-1 1몰에 대해서 1.0몰 및 0.5몰 첨가하였다.

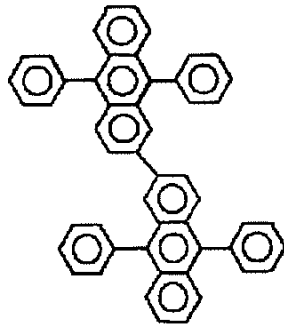
그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 40mA/cm

<sup>2</sup>이고, 발광휘도는 1000cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 8의 유기 EL 소자의 반감수명은 2500시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 9다음으로 본 발명의 실시예 9에 대해서 설명한다. 실시예 9의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자 102a의 구조와 동일하다. 다만 실시예 9에서는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 하기 화학식 14로 나타내는 디페닐안트라센 이량체(DFAD)를 사용하였다:

[화학식 14]





이 경우의 전자주입부의 유리전이점을 DSC에 의해 측정했을 때 120℃이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 1.5mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 60cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 9의 유기 EL 소자의 반감수명은 1800시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 10다음으로 본 발명의 실시예 10에 대해서 설명한다. 실시예 10의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 구조와 동일하다. 다만 실시예 10에서는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 화학식 4로 나타낸 Alq를 사용하고 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Cs(세슘) 금속을 사용하여 Alq 1몰에 대해서 1.0몰로 되도록 하는 비율로 첨가하였다. 이 경우의 전자주입부의 유리전이점을 DSC에 의해 측정했을 때 180℃이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 25mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 500cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 10의 유기 EL 소자의 반감수명은 2500시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 11다음으로 본 발명의 실시예 11에 대해서 설명한다. 실시예 11의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자의 구조와 동일하다. 다만 실시예 11에서는 발광부 및 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 화학식 4로 나타낸 Alq를 사용하고 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Na(나트륨) 금속을 사용하여 Alq 1몰에 대해서 0.5몰로 되도록 하는 비율로 첨가하였다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 3mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 200cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 11의 유기 EL 소자의 반감수명은 3000시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

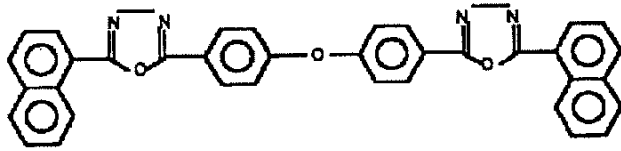
실시예 12다음으로 본 발명의 실시예 12에 대해서 설명한다. 실시예 12의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자의 구조와 동일하다. 다만 실시예 12에서는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 화학식 9로 나타낸 퀴녹살린 화합물(H1)을 사용하고 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Cs 금속을 사용하여 H1 1몰에 대해서 1.0몰로 되도록 하는 비율로 첨가하였다. 이 경우의 전자주입부의 유리전이점을 DSC에 의해 측정했을 때 103℃이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 5mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 700cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 12의 유기 EL 소자의 반감수명은 1000시간이었다. 각각 수득된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 13다음으로 본 발명의 실시예 13에 대해서 설명한다. 실시예 13의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 유기 EL 소자의 구조와 동일하다. 다만 실시예 13에서는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 하기 화학식 15로 나타낸 옥사디아졸 화합물(H2)을 사용하고, 환원성 도판트로서 Li 금속 대신 Sr 금속을 사용하여 H2 1몰에 대해서 1.0몰로 되도록 하는 비율로 첨가하였다:

[화학식15]



이 경우의 전자주입부의 유리전이점을 DSC에 의해 측정했을 때 101℃이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 1.5mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 200cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 13의 유기 EL 소자의 반감수명은 2000시간이었다. 각각 수록된 결과를 표 3에 나타낸다.

실시예 14다음으로 도 6을 참조하여 실시예 14에 대해서 설명한다. 실시예 14의 유기 EL 소자의 구조는 제 4 실시 형태의 유기 EL 소자 104의 구조와 거의 동일하다. 다만 실시예 14에서는 제 1 계면층 20으로서 막두께 5nm의 BaO(산화바륨) 층을, 증착속도 0.1nm/s로 진공증착에 의해 형성하였다. 또한 제 1 계면층 20 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 2.0mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 140cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 5의 유기 EL 소자의 반감수명은 2500시간이었다. 각각 수록된 결과를 표 4에 나타낸다.

따라서, 제 1 계면층 20을 삽입함으로써 전류밀도, 휘도, 및 반감수명이 실시예 1보다도 향상한다는 것이 밝혀졌다.

[표4]

	실시예 14	실시예 15	실시예 16	실시예 1
발광부	EM-1	EM-1	EM-1	EM-1
전자주입부/재료	EM-1/Li	EM-1/Li	EM-1/Li	EM-1/Li
전자주입부/물비	1/1	1/1	1/1	1/1
계면층	BaO	LiF	SrO	없음
전류밀도(mA/cm <sup>2</sup> )	2.0	2.2	2.0	1.0
발광휘도(cd/cm <sup>2</sup> )	140	150	100	40
전자친화력(eV)	2.8	2.8	2.8	2.8
반감수명(시간)	2500	3000	2000	1000

실시예 15다음으로 본 발명의 실시예 15에 대해서 설명한다. 실시예 15의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 14의 구조와 동일하다. 다만 실시예 15에서는 제 1 계면층 20으로서 BaO 층 대신 막두께 5nm의 LiF(불화리튬) 층을 진공증착에 의해 형성하였다. 또한 제 1 계면층 20 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 2.2mA/cm

<sup>2</sup>이고, 발광 휘도는 150cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 15의 유기 EL 소자의 반감수명은 3000시간이었다. 각각 수록된 결과를 표 4에 나타낸다.

실시예 16다음으로 본 발명의 실시예 16에 대해서 설명한다. 실시예 16의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 14의 유기 EL 소자의 구조와 동일하다. 다만 실시예 16에서는 제 1 계면층 20으로서 BaO 층 대신 막두께 5nm의 SrO(산화스트론튬) 층을 진공증착에 의해 형성하였다. 또한 제 1 계면층 20 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

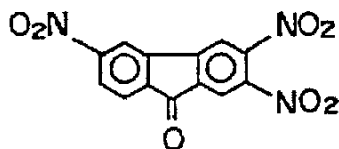
그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 2.0mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 100cd/cm<sup>2</sup>이었다. 또한 실시예 16의 유기 EL 소자의 반감수명은 2000시간이었다. 각각 수록된 결과를 표 4에 나타낸다.

비교예 1다음으로 비교예 1에 대해서 설명한다. 비교예 1의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 구조와 동일하다. 다만 비교예 1에서

는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 하기 화학식 16으로 나타내는 트리니트로플루오레논(TNF)을 사용하였다:

[화학식16]



이 경우의 전자주입부의 전자친화력은 4.1eV이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

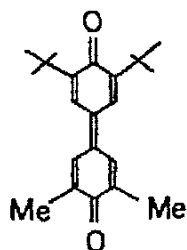
그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 0.1mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 관측되지 않았다.

비교예 1의 유기 EL 소자에서는 전자주입부의 전자친화력이 4.1eV로 높기 때문에 TNF가 발광부의 재료와 반응하여 착체를 형성했거나 또는 발광부에서 생성한 여기상태가 전자주입부로 이동하여 활성을 잃은 것으로 생각된다.

비교예 2다음으로 비교예 2에 대해서 설명한다. 비교예 2의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 구조와 동일하다. 다만 비교예 2에서는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 하기 화학식 17로 나타내는 디페노퀴논을 사용하였다:

[화학식17]



이 경우의 전자주입부의 유리전이점은 50℃이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

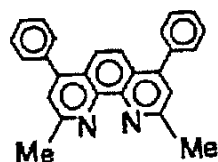
그리고 유기 EL 소자에 실시예 1과 동일하게 7V의 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 0.2mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 순간 2cd/cm<sup>2</sup>를 수득했지만 곧 소광하였다.

비교예 2의 유기 EL 소자에서는 전자주입부 재료가 질소 원자를 포함하고 있고 유리전이점도 50℃로 낮기 때문에 줄 열 때문에 전자 주입부가 파손되는 것으로 생각된다.

비교예 3다음으로 비교예 3에 대해서 설명한다. 비교예 3의 유기 EL 소자의 구조는 실시예 1의 구조와 동일하다. 다만 비교예 3에서는 전자주입부의 재료로 EM-1 대신 하기 화학식 18로 나타내는 질소 함유 화합물을 사용하였다:

[화학식18]



이 경우의 전자주입부의 유리전이점은 62℃이었다. 또한 전자주입부 이외의 각 층은 실시예 1과 동일한 재료 및 막두께로 하였다.

그리고 유기 EL 소자에 6V의 직류 전압을 인가하였다. 이 때의 전류밀도는 1.0mA/cm

<sup>2</sup>이고, 휘도는 90cd/cm<sup>2</sup>을 수득하였다. 그러나 유기 EL 소자의 반감수명은 불과 200시간이었다. 또한 발광 스펙트럼을 관측했을 때 적색 발광하는 스펙트럼 성분이 발생되어 있었다.

비교예 3에 사용된 화합식 18의 질소 함유 화합물은 수용체성이 강하기 때문에 발광부의 재료와 서로 작용하여 소광을 초래할 가능성이 강하다고 생각된다. 또한 분자량이 300 이하이고 유리전이점이 낮은 화합물은 발광부와 용이하게 혼합되기 쉬워서 그 결과 상호 작용하여 소광을 초래한다고 생각된다.

### 발명의 효과

이상 상세하게 설명한 바와 같이, 본 발명의 제 1 발명에 의하면, 전자주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물과 환원성 도판트를 함유하고 또한 이 전자주입부의 전자친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함으로써, 전자주입부와 발광부의 계면에서 발광효율이 낮은 전하이동 착체 또는 엑시플렉스가 발생하는 것을 억제할 수 있는 동시에 전자주입부에서 발광부로 전자를 주입한 후의 바람직하지 않은 블로킹 접합의 발생을 억제할 수 있게 되었다. 따라서 본 발명에 의해 발광효율의 향상을 도모할 수 있고 또한 수명 연장된 유기 EL 소자를 제공할 수 있게 되었다.

또한, 본 발명의 제 2 발명에 의하면, 전자주입부에 전자수송성 화합물 및 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트를 포함하고, 또한 전자주입부의 전자친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함으로써, 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물을 사용하는 경우는 물론 질소 원자를 포함한 방향족 고리 화합물을 사용하는 경우에도 전자주입부와 발광부와의 계면에서 발광효율이 낮은 전하이동 착체 또는 엑시플렉스가 발생하는 것을 억제할 수 있는 동시에, 전자주입부에서 발광부로 전자를 주입한 후 바람직하지 않은 블로킹 접합의 발생을 억제할 수 있게 되었다. 따라서 제 2 발명에 의해 보다 자유도가 높고 발광효율의 향상을 도모할 수 있고 또한 수명 연장된 유기 EL 소자를 제공할 수 있게 되었다.

### (57)청구의 범위

#### 청구항1

적어도 양극층, 발광부, 전자주입부 및 음극층을 차례로 적층한 구조를 갖고, 상기 전자주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 방향족 고리 화합물과 환원성 도판트를 함유하고, 또한 상기 전자주입부의 전자친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

#### 청구항2

제 1 항에 있어서,

전자주입부의 유리전이점을 100℃ 이상의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

#### 청구항3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

방향족 고리 화합물이 안트라센, 플루오렌, 페릴렌, 피렌, 페난트렌, 크리센, 테트라센, 루브렌, 터페닐렌, 퀴터페닐렌, 세크시페닐렌 및 트리페닐렌으로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 방향족 고리로 형성된 기를 함유함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

#### 청구항4

제 1 항 내지 제 3 항중 어느 한 항에 있어서,

방향족 고리 화합물이 스티릴 치환된 방향족 고리, 디스티릴 치환된 방향족 고리 및 트리스티릴 치환된 방향족 고리로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 방향족 고리로 형성된 기를 함유함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

#### 청구항5

제 1 항 내지 제 4 항중 어느 한 항에 있어서,

환원성 도판트가 알칼리금속, 알칼리토금속, 희토류금속, 알칼리금속의 산화물, 알칼리 금속의 할로겐화물, 알칼리토금속의 산화물, 알칼리토금속의 할로겐화물, 희토류금속의 산화물 또는 희토류금속의 할로겐화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 물질임을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항6**

제 1 항 내지 제 5 항중 어느 한 항에 있어서,  
환원성 도판트의 일함수를 3.0eV 이하의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항7**

제 1 항 내지 제 6 항중 어느 한 항에 있어서,  
환원성 도판트가 Li, Na, K, Rb 및 Cs로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리금속임을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항8**

제 1 항 내지 제 7 항중 어느 한 항에 있어서,  
전자주입부의 에너지 차이를 2.7eV 이상의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항9**

제 1 항 내지 제 8 항중 어느 한 항에 있어서,  
방향족 고리 화합물과 환원성 도판트의 첨가비율을 1:20 내지 20:1(몰비) 범위내의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항10**

제 1 항 내지 제 9 항중 어느 한 항에 있어서,  
발광부와 전자주입부에 질소 원자를 포함하지 않은 동일한 종류의 방향족 고리 화합물을 함유함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항11**

제 1 항 내지 제 10 항중 어느 한 항에 있어서,  
음극층과 전자주입부 사이 및 양극층과 발광부 사이, 또는 이들중 어느 한 쪽에 계면층을 설치함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항12**

적어도 양극층, 발광부, 전자주입부 및 음극층을 차례로 적층한 구조를 갖고, 상기 전자주입부에 전자수송성 화합물 및 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도판트를 포함하고, 또한 전자주입부의 전자친화력을 1.8 내지 3.6eV 범위내의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항13**

제 12 항에 있어서,  
환원성 도판트가 Na, K, Rb, Cs, Ca, Sr 및 Ba로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리금속 또는 알칼리토금속임을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항14**

제 12 항 또는 제 13 항에 있어서,  
전자수송성 화합물이 질소 함유 복소환 화합물을 포함함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항15**

제 14 항에 있어서,  
질소 함유 복소환 화합물이 질소 함유 착체, 퀴놀린 유도체, 퀴녹살린 유도체, 옥사디아졸 유도체, 티아디아졸 유도체 및 트리아졸 유도체로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 화합물임을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

**청구항16**

제 12 항 내지 제 15 항중 어느 한 항에 있어서,

전자수송성 화합물과 환원성 도판트의 첨가비율을 1:20 내지 20:1(몰비) 범위내의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

#### 청구항17

제 12 항 내지 제 16 항중 어느 한 항에 있어서,

전자주입부의 유리전이점을 100℃ 이상의 값으로 함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

#### 청구항18

제 12 항 내지 제 17 항중 어느 한 항에 있어서,

발광부 및 전자주입부에 동일한 종류의 전자수송성 화합물을 함유함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

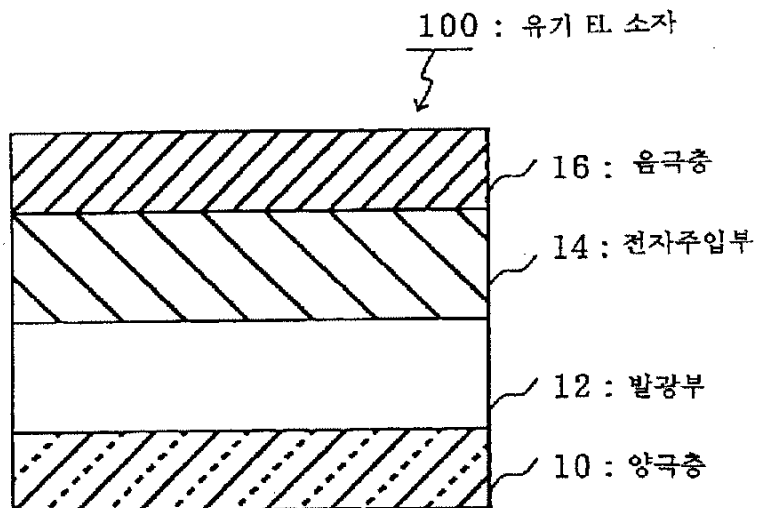
#### 청구항19

제 12 항 내지 제 18 항중 어느 한 항에 있어서,

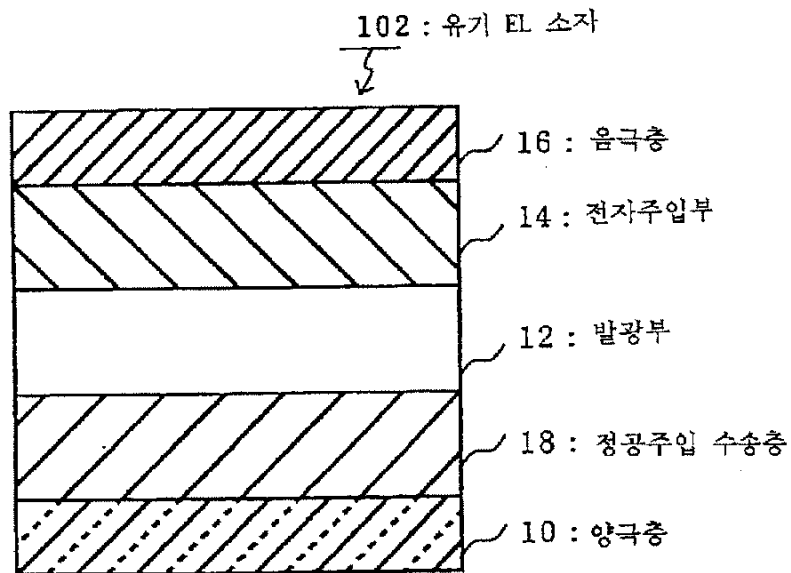
음극층과 전자주입부 사이 및 양극층과 발광부 사이, 또는 이들중 어느 한 쪽에 계면층을 설치함을 특징으로 하는 유기 전자 발광 소자.

도면

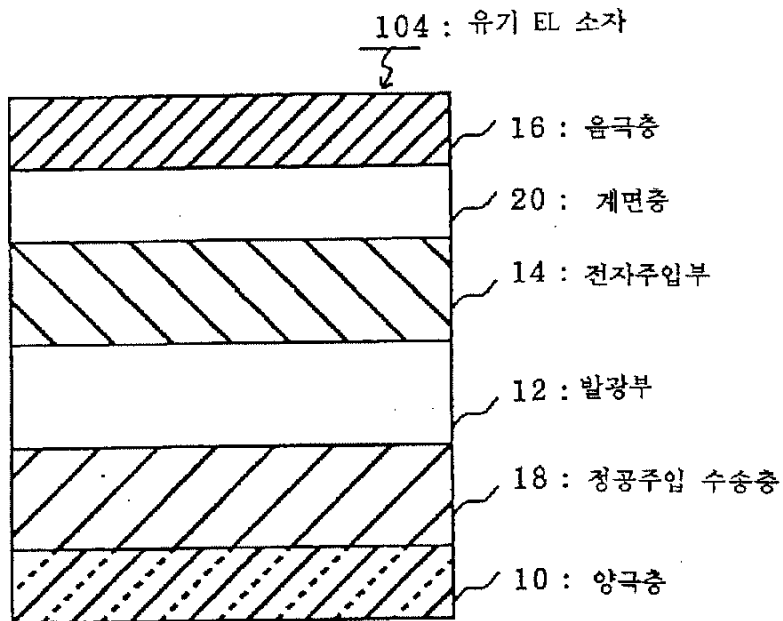
도면1



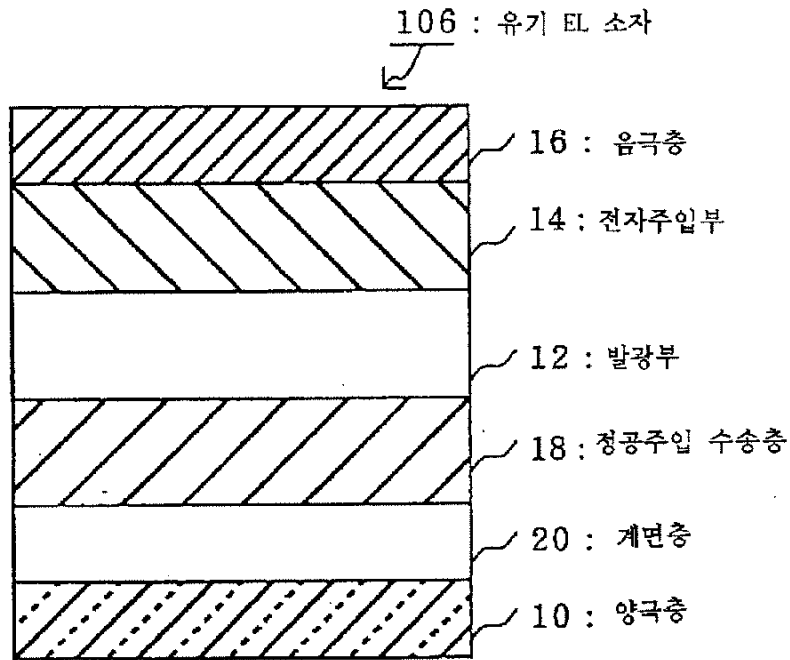
도면2



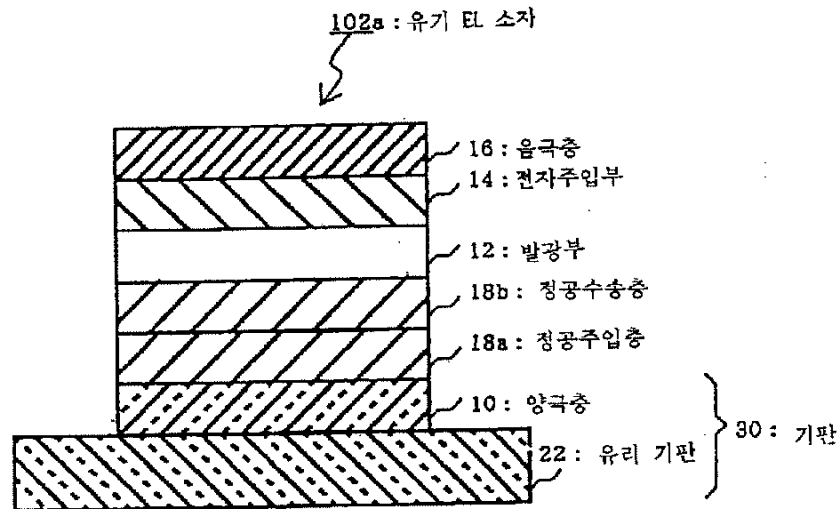
도면3



도면4

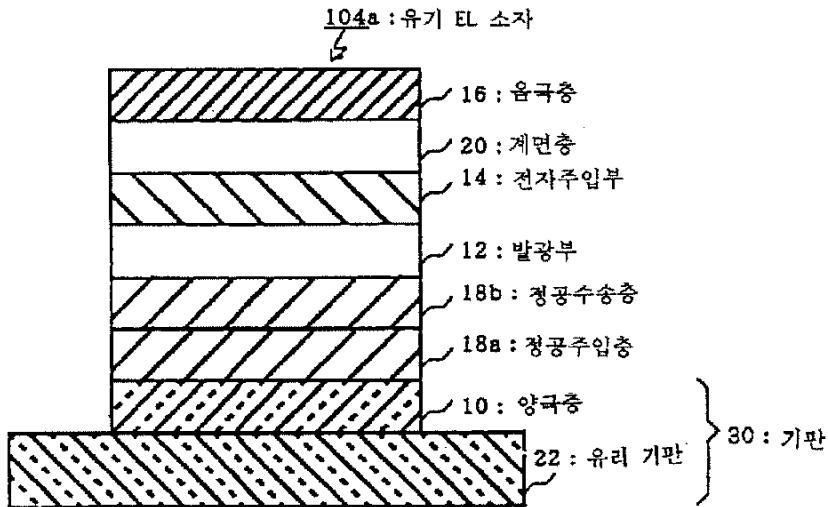


도면5

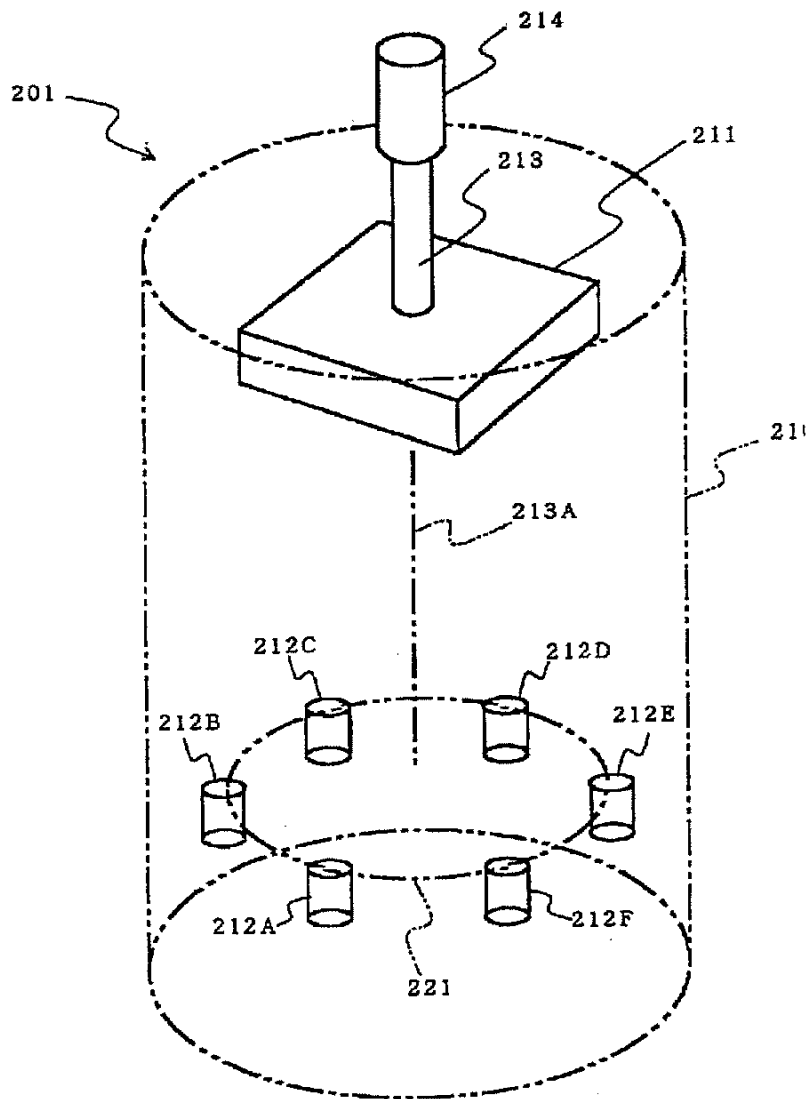


도면6

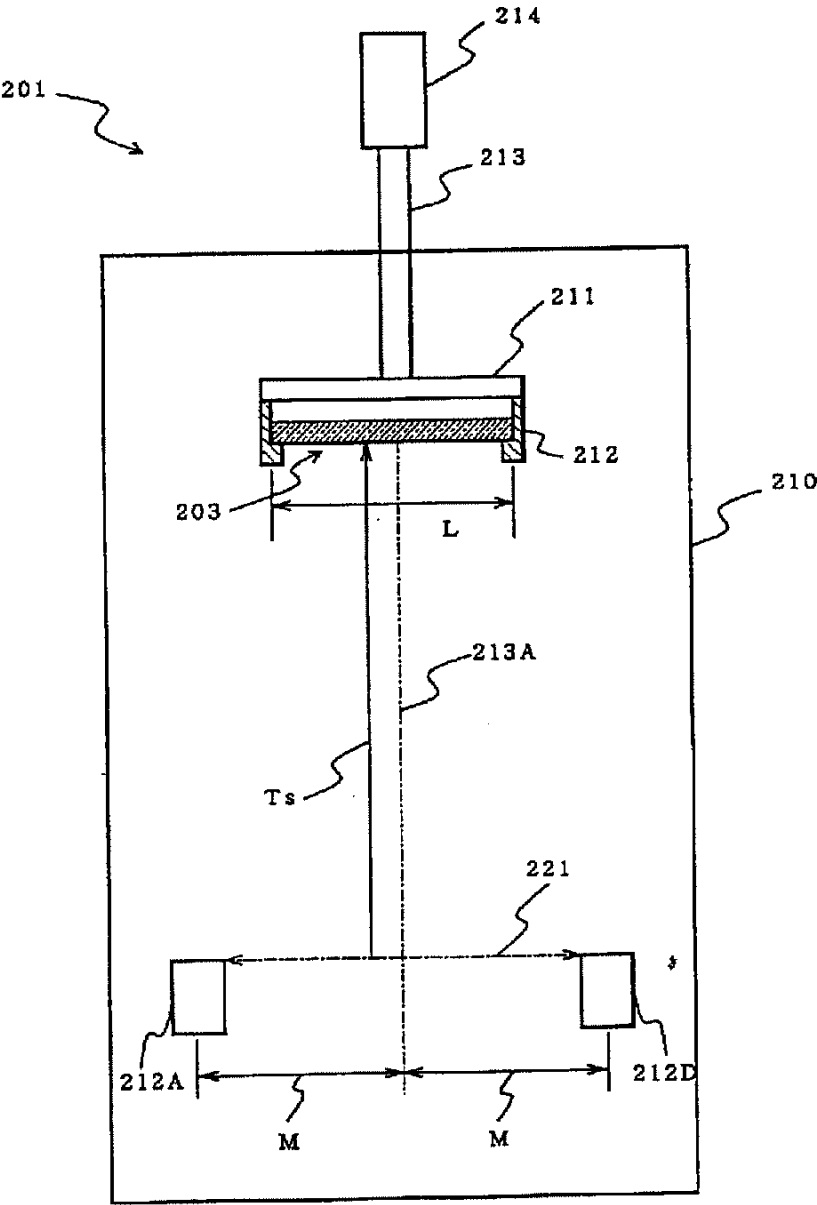




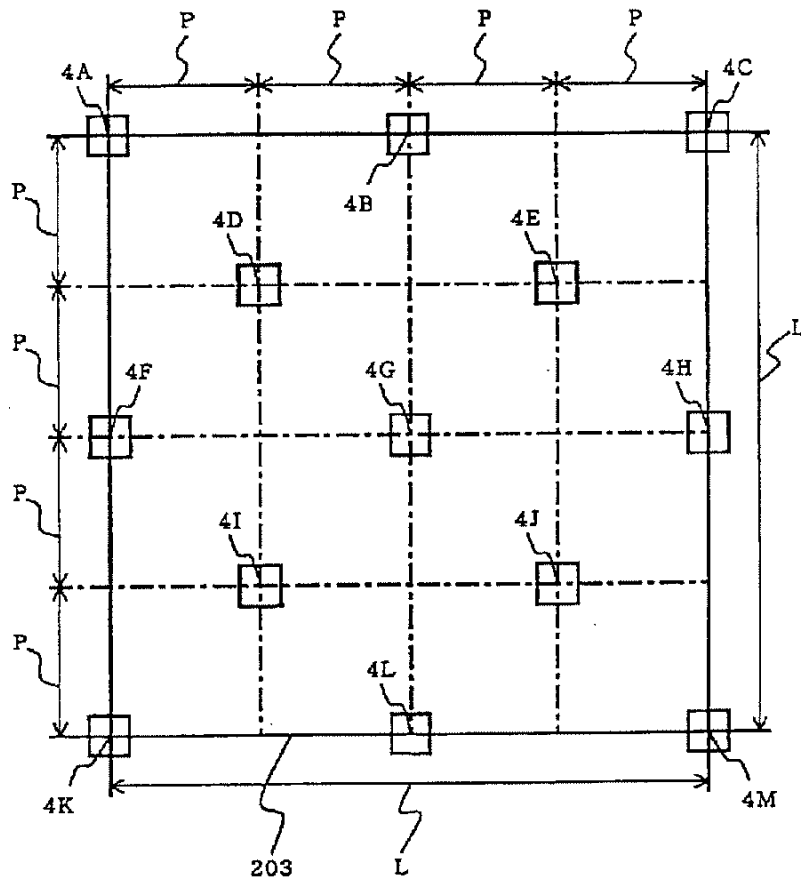
도면7



도면8



도면9



도면10

60 : 유기 EL 소자

